Tome 21 N° 11 NOVEMBRE 1960

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

DÉTERMINATION PAR SPECTROMÉTRIE DE MASSE DES SECTIONS EFFICACES DE PRODUCTION DE FRAGMENTS LOURDS PAR DES PROTONS DE 155 MeV SUR ^{16}O

Par E. GRADSZTAJN,
Laboratoire de Physique Nucléaire, Faculté des Sciences, Orsay.

Résumé. — La méthode de dilution isotopique appliquée à la mesure de la section efficace de la réaction connue $^{51}V(n, \gamma)^{52}V$, a donné des résultats très satisfaisants. Elle a donc été utilisée pour l'étude de la formation de ^{6}Li dans ^{16}O. La cible irradiée par des protons de 155 MeV à Orsay est constituée par de l'eau tridistillée.

Simultanément, la section efficace de formation de ^{7}Be dans les mêmes conditions a été déterminée par comptage des γ de 480 keV.

Le rapport de ces deux sections efficaces est en accord avec un calcul publié récemment par I. Dostrovsky et al.

Abstract. — The isotope dilution method applied to the determination of the known cross section of the reaction $^{51}V(n, \gamma)^{52}V$ has given satisfactory results. It has then been used for studying the formation of ^{6}Li in ^{16}O.

The target, bombarded with 155 MeV protons is tri-distilled water.

Simultaneously the production cross section of ^{7}Be under the same conditions was measured by counting the 480 keV γ rays.

The ratio of these two cross sections is in agreement with recent calculations made by I. Dostrovsky et al.

I. Introduction. — Parmi les méthodes de mesure de la section efficace d'une réaction nucléaire, celle qui consiste à déterminer le nombre de noyaux produits a surtout été développée par radiochimie. De ce fait, les réactions nucléaires conduisant à des isotopes stables ont été, jusqu'à présent, ignorées, à de rares exceptions près [1]. Cette remarque, valable également pour les isotopes à vie très longue, concerne notamment les réactions produisant ce qu'on appelle actuellement les fragments lourds (Li Be, etc.). Si la mesure de la section efficace de production de ^{7}Be dont la période et le rayonnement sont très commodes, est déjà effectuée dans certains cas [2], il n'en va pas de même en ce qui concerne ^{6}Li et ^{7}Li.

Nous nous sommes donc proposés d'entreprendre de telles mesures et, à cet effet, nous avons construit un spectromètre de masse qui permet, à l'aide de la méthode de dilution isotopique [3], d'obtenir le résultat désiré.

II. Le spectromètre de masse et la source thermo-ionique. — Ce spectromètre de masse [4], dont la figure 1 donne une vue d'ensemble, est un appareil à simple déviation magnétique dont le rayon est de 22 cm et le secteur magnétique de 60°. Afin d'augmenter la sensibilité de la détection, le collecteur d'ions classique (cylindre de Faraday) a été remplacé par un multiplicateur d'électrons à dynodes de cuivre-beryllium, qui fonctionne avec un gain de 10 000 [5]. La figure 2 montre un spectre de masse du chrome naturel obtenu avec cet appareil.

La source d'ions que nous utilisons est du type thermo-ionique. En effet, seule cette source est capable de produire des ions avec un rendement suffisant à partir de quantités d'éléments solides ne dépassant pas, dans certains cas, 10^{-12} g et même 10^{-14} g.

Elle nous a permis d'obtenir, à partir de 5.10^{-7} g de chrome se présentant sous forme d'acide chromique, un courant d'ions $^{52}Cr^{+}$ de 10^{-12} A pendant 45 minutes. On obtient de même 10^{-12} A pendant 20 minutes avec 10^{-10} g de lithium sous forme de sulfate.

Cette source convient donc particulièrement bien

Fig. 1.

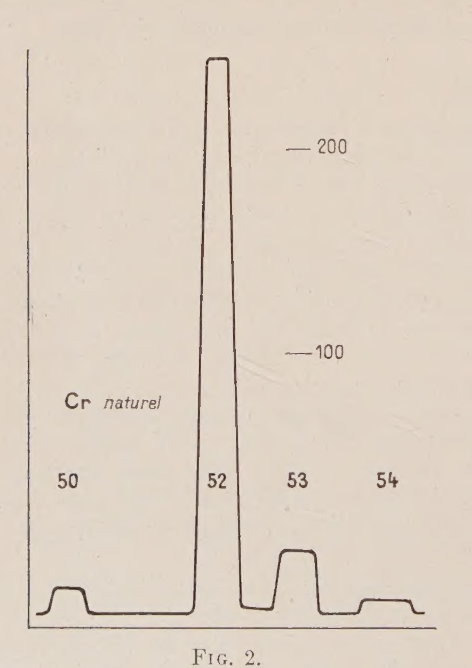


Fig. 2.

à l'étude des réactions nucléaires et spécialement à celles que nous avons envisagées et qui conduisent à des quantités de lithium de 10^{-10} g à 10^{-11} g après un temps d'irradiation raisonnable.

III. Mesure de la section efficace de la réaction $^{51}V(n, \gamma)\,^{52}V$ par la méthode de dilution isotopique.

— Afin de valider la technique que nous allions utiliser pour doser le lithium, et obtenir une indication sur les possibilités de cette méthode, nous avons mesuré la section efficace d'une réaction déjà connue [6].

Processus expérimental. — 65 mg de vanadium naturel ont été irradiés pendant une semaine par un flux de neutrons thermiques de l'ordre de $1{,}6.10^{12}$ neutrons/sec/cm² dans la pile P_2 à Saclay.

La réaction $^{51}V(n, \gamma)^{52}V$ conduit à la formation d'un isotope stable du chrome par émission β^- :

$$^{52}V \xrightarrow[3{,}7\ \text{min}]{\beta^-} \rightarrow {}^{52}Cr \text{ stable.}$$

Pour effectuer le dosage du chrome 52, nous avons utilisé comme entraîneur du chrome 53 très pur obtenu à l'aide du séparateur d'isotope à double déviation magnétique d'Orsay [7]. La proportion de ^{52}Cr dans cet entraîneur était ramenée à 1/900.

TABLEAU I

Proportions en atomes (%)					Rapport $\frac{^{52}Cr}{^{53}Cr}$	Poids de ^{52}Cr µg	Poids d'entraineur µg
Isotopes	50	52	53	54	—	—	—
Cr naturel	4,31	83,76	9,55	2,38			
Cr entraîneur (Orsay)	—	0,11	99,89	—			
Réactifs + Vanadium + entraîneur	0,12	2,37	98,44	0,07	$\frac{2,41 \pm 0,05}{100}$	0,52 ± 0,01	21,90 ± 0,20
Réactifs + Vanadium irradié + entraîneur	0,11	3,68	96,15	0,06	$\frac{3,81 \pm 0,03}{100}$	0,82 ± 0,01	21,90 ± 0,20

Le chrome naturel introduit par contamination des réactifs chimiques et de la cible de vanadium donnait une contribution en ^{52}Cr qui a également été déterminée par dilution isotopique. Cette contamination correspondait à une quantité de ^{52}Cr de 0,52 µg pour environ 30 g de réactifs et 65 mg de vanadium.

Le traitement chimique qui précède l'analyse isotopique réduisant l'émission thermo-ionique chaque dosage a nécessité l'emploi d'environ 20 µg, d'entraîneur, au lieu du microgramme qui est amplement suffisant quand on utilise de l'acide chromique pur.

Le résultat de nos mesures au spectromètre de masse (résumé dans le tableau I) a donné pour la quantité de ^{52}Cr produite par l'irradiation la valeur : 0,30 ± 0,02 µg. La valeur de la section efficace déduite des mesures ci-dessus est donc de :

$$5,4 \pm 0,7 \text{ barns.}$$

L'incertitude relativement importante provient pour moitié de la détermination du flux de neutrons ; d'autre part, la mauvaise émission thermo-ionique déjà mentionnée plus haut a contribué à l'augmenter. La valeur admise pour la section efficace est de :

$$5,1 \pm 0,2 \text{ barns.} \qquad (6)$$

La méthode de dilution isotopique est donc utilisable pour le dosage des isotopes stables produits par transmutation, mais il apparaît au cours de la mise en application de la méthode, certaines difficultés que nous pouvons résumer à : 1° la contamination, qui limite véritablement la méthode ; 2° l'extraction chimique de l'élément à doser qui conduit souvent à une mauvaise émission thermo-ionique, ce qui nécessite l'emploi d'une grande quantité d'entraîneur et, par suite, impose à cet entraîneur d'être isotopiquement très pur.

Nous avons donc tenu compte de ces éléments dans l'étude suivante sur la section efficace de production du lithium, en réduisant le nombre des manipulations indispensables et en utilisant une méthode ne nécessitant pas d'opération chimique.

IV. **Production de ^{6}Li par la réaction $p_{150 MeV} + {}^{16}O$.** — La formation de fragments lourds par bombardement de protons est actuellement interprétée de diverses manières. Dans le cas des noyaux lourds, il peut s'agir d'évaporation d'agglomérats (Be, Li, B, etc...) ou d'interaction directe, le proton incident cédant de l'énergie à une partie du noyau agglomérée pendant un court instant par suite des fluctuations de la matière nucléaire [9].

Dans le cas des noyaux légers, ces deux processus peuvent entrer en compétition avec la spallation du noyau bombardé, le noyau résiduel étant alors un fragment lourd.

A la suite d'une suggestion de M. Radvanyi, nous nous sommes proposés d'étudier les variations en fonction de l'énergie des protons de la section efficace de production de ^{6}Li, ^{7}Li, ^{7}Be dans ^{16}O afin de déterminer la contribution de la spallation et celle de la formation directe.

Nos premières mesures ont porté uniquement sur ^{6}Li et ^{7}Be.

Le dosage de ^{7}Be a été effectué par comptage des γ de 480 keV.

En ce qui concerne ^{6}Li, c'est la méthode de dilution isotopique que nous avons utilisée. La cible irradiée était constituée par un cylindre rempli d'eau placé à la sortie du synchro-cyclotron d'Orsay, les protons ayant une énergie de 155 MeV.

Le choix de cette cible nous a permis d'utiliser une méthode extrêmement simple pour la récupération des produits de réaction : aucune extraction chimique n'est nécessaire : l'eau irradiée est simplement concentrée jusqu'à une goutte qui est déposée sur le filament de la source d'ions, pour l'analyse isotopique du lithium.

L'eau employée est tridistillée ; la quantité de

lithium résiduel, mesurée très précisément par dilution isotopique (1).

Lors des mesures, la quantité de lithium naturel contenue dans l'eau était de 10^{-9} g ; celle de ^{6}Li formée après 10 heures d'irradiation d'un cylindre profond de 6 cm était d'environ 10^{-10} g. Le flux de protons, étalonné à l'aide d'une feuille d'aluminium était de 0,2 μAh.

Résultat. — Compte tenu du fait que du lithium 7 est formé en même temps que ^{6}Li, la section efficace trouvée pour la formation de ^{6}Li dans ^{16}O est de

$$12 \pm 4 \text{ mb.}$$

Dans les mêmes conditions (énergie des protons incidents : 155 MeV ; perte d'énergie dans l'eau : 30 MeV) celle de la formation de ^{7}Be est de :

$$5 \pm 1{,}5 \text{ mb.}$$

(1) Avec du lithium^6 séparé à Harwell : (^{6}Li)/(^{7}Li) = 60.

Nous n'avons obtenu jusqu'à présent qu'une seule valeur concernant ^{6}Li, mais il est intéressant de noter que le rapport

$$\frac{\text{section efficace } ^6\text{Li}}{\text{section efficace } ^7\text{Be}}$$

est sensiblement égal à celui que donnent les calculs sur l'évaporation publiés récemment par Dostrovsky et al. [10] et effectués pour des protons de 940 MeV et des noyaux de cuivre. Par ailleurs, si l'on considère qu'en plus de l'évaporation, la spallation de ^{16}O intervient pour une grande part dans la formation des fragments lourds, nos résultats concordent avec ceux de E. Baker et al. [2].

Il nous reste donc à les confirmer en améliorant la précision des mesures et à doser le lithium 7, ce qui exige une cible d'eau extrêmement pure.

Je remercie M. Bernas pour les conseils et l'aide qu'il m'a constamment prodigués au cours de ce travail.

Manuscrit reçu le 23 juillet 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Gordon (B. M.) et Friedman (L.), *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 1053. Balestrini (S. J.), *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 1502.
[2] Baker (E.), Friedlander (G.) et Hudis (J.), *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 1319.
[3] Ingrham (M. G.), Stable Isotope Dilution. *Annual Rev. Nucl. Sc.*, 1954, 81.
[4] Gradsztajn (E.), *Thèse 3e Cycle*, Paris, 1959.
[5] Duong Nhu-Hoa, *Thèse 3e Cycle*, Paris, 1960.
[6] Brookhaven National Laboratory report 325, 1955.
[7] Bernas (R. H.), Sarrouy (J. L.) et Camplan (J.), *J. Physique Rad.*, sous presse.
[8] Hudis (J.) et Miller (J. M.), *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 1322.
[9] Blokhintsev (D. I.), *J. Exp. Théor. Phys.* (U. R. S. S.), 1957, **33**, 1295.
[10] Dostrovsky (I.), Fraenkel (Z.) et Rabinowitz (P.), *Phys. Rev.*, 1960, **118**, 791.

MODÉLE UNIFIÉ POUR LES PHÉNOMÈNES DE PHOTODÉSINTÉGRATION NUCLÉAIRE VERS 20 MeV

Par Georges MONSONEGO,
Laboratoire de Physique Nucléaire, Faculté des Sciences, Orsay (Seine-et-Oise).

Résumé. — Nous étudions la résonance géante à l'aide d'une formulation unifiée qui rend compte du caractère individuel et collectif du phénomène. Nous faisons deux transformations unitaires sur l'hamiltonien du noyau, en introduisant deux nouveaux opérateurs conjugués α et π, avec une condition subsidiaire sur les vecteurs d'état puisque nous vons étendu le nombre de degrés de liberté. Le nouvel hamiltonien comporte une partie collective en termes de α et π, un partie intrinséque, et des termes d'interaction. Cete formulation, fondée sur le succès du modèle phénoménologique de Bohr et Mottelson, semble être satisfaisante ; les calculs théoriques de l'énergie de résonance, de la largeur de raie, de la section efficace, sont en accord avec l'expérience. La condition supplémctaire joue un rôle important dans le calcul de la largeur de raie. Nous étudions aussi l'effet des forces d'échange neutron-proton ainsi que la distribution angulaire des particules émises.

Abstract. — We formulate an unified model for the study of the giant resonance, which takes into account the individual and collective character of this phenomenon. We perform two unitary transformations on the Hamiltonian of the nucleus, introducing two new conjugate operators α and π, with a subsidiary condition on the eigenfunctions since we have increased the number of degrees of freedom. In the new Hamiltonian, there are : a collective part in terms of α and π an intrinsic part and interaction terms. This treatment based on the success of the Bohr and Mottelson phenomenological model seems to be successful : the theoretical calculations of the energy, width and cross section of the giant resonance, agree with the experimental data. The subsidiary condition plays an important rôle in the calculation of the width. We study also the effect of neutron-proton exchange forces and the angular distribution of the emitted particles.

I. **Introduction.** — Les différents modèles nucléaires qui ont été proposés pour l'absorption de photons d'énergie de l'ordre de 20 MeV par les noyaux se présentent en général sous deux formes en apparence antagonistes : modèles collectifs [1] et modèles à particules indépendantes [2]. Aucun de ces deux types de modèles ne donne une description totale satisfaisante de la résonance géante. Les premiers ne peuvent rendre compte des phénomènes d'émission directe, tandis que les seconds donnent en général des énergies de résonance trop petites. Peu de tentatives [3] ont jusqu'à présent été faites pour unifier le modèle collectif et le modèle des couches. Nous nous proposons d'étudier ici d'un point de vue purement méthodologique (*) un modèle unifié en partant d'une formulation générale due à Jean et Touchard [4].

II. **Formulation.** — Nous supposerons comme dans le modèle phénoménologique de Goldhaber-Teller que l'absorption dipolaire est due à l'oscillation collective de l'ensemble des protons par rapport à l'ensemble des neutrons. Les variables collectives seront :

$$\boldsymbol{r} = \sum_{k=1}^{A} t_k \boldsymbol{r}_k \tag{1}$$

$$\boldsymbol{p} = \frac{ZN}{A} \sum_{k=1}^{A} \boldsymbol{p}_k t_k$$

avec

$$t_k = \begin{cases} 1/Z \text{ pour les neutrons : } k = 1, 2 \ldots Z \\ -1/N \text{ pour les neutrons } k = Z+1, \ldots A \end{cases}$$

où $Z + N = A$ nombre de masse et $\boldsymbol{r}$ est la distance entre le centre de gravité des protons et le centre de gravité des neutrons.

$$[\boldsymbol{r}, \boldsymbol{p}] = i\hbar.$$

Soit

$$H = \sum_{k=1}^{A} \frac{p_k^2}{2m} + V$$

l'hamiltonien du noyau, V est le potentiel nucléaire supposé indépendant des vitesses ; alors

$$[\boldsymbol{r}, H] = \frac{i\hbar}{M}\boldsymbol{p} \quad \text{avec} \quad M = mZN/A. \tag{2}$$

Introduisons *a priori* deux variables subsi-

(*) Les calculs détaillés concernant cette étude seront publiés dans la thèse de l'auteur actuellement en préparation.

diaires α et π canoniquement conjuguées (qui vont jouer le rôle des variables r et p) avec la condition de contrainte $\alpha\Phi = 0$ sur un vecteur d'état Φ de H. En effectuant sur H les deux transformations unitaires

$$U_1 = \exp\left(\frac{i}{\hbar}\,\pi . r\right) \quad \text{et} \quad U_2 = \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\,\alpha p\right)$$

l'hamiltonien du problème devient (5) :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \Delta H \qquad (3)$$

$$\begin{cases} \mathcal{H}_0 = \left(H - \dfrac{p^2}{2M}\right) + \dfrac{1}{2M}\,\pi^2 - \dfrac{1}{2\hbar^2}\,\text{P.D.}([p, [p, H]])\alpha^2 \\ \quad = \mathcal{H}_{\text{intrinsèque}} + \mathcal{H}_{\text{collectif}} \\ \Delta H = \dfrac{i}{\hbar}[p, H]\,\alpha + \ldots \qquad (4) \\ \text{(P. D.} \equiv \text{partie diagonale de)} \end{cases}$$

$\mathcal{H}_0$ est l'hamiltonien d'ordre zéro où les mouvements sont découplés. Le coefficient de α^2 est la partie diagonale du double commutateur dont on calculera la valeur moyenne sur l'état de base intrinsèque. L'influence du terme de recul $p^2/2M$ sur H est négligeable. Un calcul simple montre que cela revient à remplacer la masse m du nucléon par une masse réduite telle que

$$m^*/m = A/(A-1)$$

ΔH est un terme d'interaction couplant le mode collectif au mode intrinsèque. Les termes non écrits sont la partie non diagonale du double commutateur et la série des autres commutateurs triple, quadruple, etc.

La condition de contrainte devient :

$$r\Psi = 0 \qquad (5)$$

où Ψ est un vecteur d'état de $\mathcal{H}$.

En prenant pour V une somme d'oscillateurs harmoniques :

$$V = \frac{1}{2}\,m\omega^2 \sum_{k=1}^{A} r_k^2$$

$\mathcal{H}$ prend la forme simple.

$$\mathcal{H} = \left(H - \frac{p^2}{2M}\right) + \frac{1}{2M}\,\pi^2 + M\omega^2\,\alpha . r + \frac{1}{2}\,M\omega^2\,\alpha^2. \qquad (3')$$

La fréquence collective est alors égale à la fréquence intrinsèque de chacun des nucléons ; nous retrouvons le résultat de Brink. A cause de (5) le terme de couplage $M\omega^2\,\alpha . r$ est inopérant ; la condition de contrainte assure donc ici le découplage des mouvements. Ceci montre l'importance de cette condition sur les termes de couplage. En général les fonctions d'essai que nous choisirons pour Ψ ne satisferont pas (5) mais le résultat précédent montre que tant que nous travaillerons sur l'hamiltonien d'ordre zéro $\mathcal{H}_0$ où les mouvements sont découplés, nous pourrons ne pas en tenir compte.

III. **Énergie de résonance.** — 1° Potentiel sans force d'échange. — Nous supposerons le potentiel nucléaire purement central $V = \sum_{a<b} V(r_{ab})$ où $r_{ab} = |r_a - r_b|$ et pour simplifier les calculs nous supposerons un noyau à symétrie sphérique. De plus dans l'état fondamental intrinsèque, on considérera la densité nucléaire $\rho = 3/4\pi R^3$ constante dans le noyau, nulle à l'extérieur et les effets de surface seront négligés. Le coefficient C de $\frac{1}{2}\alpha^2$ devient en développant le double commutateur et en passant à l'espace des moments :

$$C = -\left(\frac{ZN}{A}\right)^2 \left(\frac{1}{2\pi}\right)^3 \sum_{i<j} (t_i - t_j)^2 \int v(k)\, k_z^2 < e^{ik(r_i - r_j)} > d^3 k \qquad (6)$$

$v(k)$ est la transformée de Fourier de $V(r_{ij})$. C n'est différent de zéro que si $t_i \neq t_j$ c'est-à-dire si i est un proton et j un neutron. La seule contribution à C est donc la partie neutron-proton des forces nucléaires ce qui traduit l'hypothèse de départ. $< e^{ik(r_i - r_j)} >$ est la valeur moyenne de $e^{ik(r_i - r_j)}$ calculée sur l'état fondamental intrinsèque. Les calculs ont été faits pour un puits carré, un puits gaussien et un puits de Yukawa avec $R = r_0 A^{1/3}$ et $r_0 = 1{,}2 \times 10^{-13}$ cm.

Les paramètres de profondeur et portée sont ceux qui résultent des expériences de diffusion nucléon-nucléon (6). Le cœur dur a été négligé puisque selon les idées actuelles sur la matière nucléaire seul l'effet des forces à longue portée intervient dans les phénomènes collectifs. Enfin nous avons pris $Z = N = A/2$ et nous trouvons que pour ces trois puits l'énergie de vibration collective est

$$\hbar\omega_c \approx 39\, A^{-1/6}$$

qui donne un bon accord avec l'expérience.

2° Potentiel avec force d'échange. — Nous nous limiterons à une interaction de la forme :

$$V(ab) = V_{ab}[(1-x) + xP_{ab}] = V_{ab}(1-x) + V_{ab}^{e} \qquad (7)$$

x étant la fraction de force d'échange et P_{ab} l'opérateur qui échange les positions des particules a et b. L'hamiltonien du noyau

$$H = H + V_e \quad \text{avec} \quad V_e = \sum_{a<b} V_{ab}^{e}$$

se transforme par U_1 en

$$H_1 = H + \sum_{i<i'} V_{ii'}^{e} + \sum_{i<j'} V_{jj'}^{e} + h_1$$

où

$$h_1 = \sum_{i<j} V_{ij}^{\mathrm{e}} - \frac{i}{\hbar}\left(\frac{A}{ZN}\right) V_{ij}^{\mathrm{e}}(z_i - z_j)\,\pi_z$$

$$- \frac{1}{2\hbar^2}\left(\frac{A}{ZN}\right)^2 \sum_{i<j} V_{ij}^{\mathrm{e}}(z_i - z_j)^2\,\pi_z^2 + \ldots$$

en n'écrivant que la composante z pour simplifier la notation, nous négligeons le deuxième terme de h_1 qui est nul en moyenne — h_1 est une série de terme général proportionnel à $(A/ZN\,\pi)^n$ donc rapidement convergente et nous pouvons nous limiter à une approximation quadratique. Avec ces approximations, la deuxième transformation unitaire U_2 sur H_1 donne un hamiltonien $\mathcal{H}$ où variables collectives et intrinsèques ne sont plus séparées. Pour étudier l'influence des forces d'échange sur les paramètres collectifs il est suffisant d'avoir l'hamiltonien collectif d'ordre zéro $\mathcal{H}_c^0$ qui est obtenu en prenant $\mathcal{H}$ en moyenne sur le vecteur de base intrinsèque ; nous obtenons alors :

$$\mathcal{H}_c = \frac{\boldsymbol{\pi}^2}{2M} + \frac{1}{2}(C + C_1)\,\boldsymbol{\alpha}^2 + C_{\alpha\pi}\,\boldsymbol{\alpha}.\boldsymbol{\pi} + C_{\alpha^2\pi^2}\,\boldsymbol{\alpha}^2\,\boldsymbol{\pi}^2 \quad (8)$$

avec

$$\frac{1}{M^*} = \frac{1}{M}\left\{1 - \frac{M}{2\hbar^2}\left(\frac{A}{ZN}\right)^2 < \sum_{i<j} V_{ij}^{\mathrm{e}}(z_i - z_j)^2 > \right\}$$

$$C_1 = -\frac{1}{\hbar^2} < \left[\boldsymbol{p}, \left[\boldsymbol{p}, \sum_{i<j} V_{ij}^{\mathrm{e}}\right]\right] > \quad (9)$$

$$C_{\alpha\pi} = \frac{i}{\hbar^3}\left(\frac{A}{ZN}\right)^2 < p_z\left[p_z, \sum_{i<j} V_{ij}^{\mathrm{e}}(z_i - z_j)^2\right] >$$

$$C_{\alpha^2\pi^2} = \frac{1}{4\hbar^4}\left(\frac{A}{ZN}\right)^2 < \left[p_z, \left[p_z, \sum_{i<j} V_{ij}^{\mathrm{e}}(z_i - z_j)^2\right]\right] >.$$

Dans ces expressions i est un proton, j un neutron. Comme nous négligeons le spin des particules, il n'est pas nécessaire d'antisymétriser la fonction d'onde intrinsèque et nous choisissons un produit d'ondes planes. Les calculs ont été faits avec un puits carré et nous trouvons :

$$M^* = \frac{M}{1 + 0{,}8x} \quad (10)$$

$$\hbar^2\,C_{\alpha^2\pi^2} \ll \hbar C_{\alpha\pi}$$

et pour la fréquence de vibration :

$$\omega_c^* \approx \omega_c.$$

Les paramètres de la dynamique collective sont donc directement rattachés aux grandeurs caractéristiques des nucléons et des interactions nucléaires. En particulier la fréquence des oscillations collectives est parfaitement corrélée aux paramètres des forces collectives déduits des expériences de diffusion. De plus les forces d'échange n'apportent pas de modification sensible à l'énergie de résonance. Leur effet revient à remplacer la masse M de l'oscillateur collectif par une masse réduite M^* donnée par (10), effet qui est compensé par une variation sensiblement équivalente du coefficient de la forme de rappel.

IV. Section efficace totale intégrée — L'opérateur de transition dipolaire électrique normalisé à un flux incident de un photon par cm² par sec est :

$$D_\mu = e\sqrt{2\pi\,\hbar\omega_c}\,\frac{ZN}{A}\,r_\mu$$

en prenant Oz pour direction incidente des photons ; $\mu = \pm 1$ et $r_{\pm 1} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}}(x \pm iy)$, $D\mu$ se transforme par U_1 et U_2 en tenant compte de (5)

$$\mathfrak{D}_\mu = e\sqrt{2\pi\,\hbar\omega_c}\,\frac{ZN}{A}\,\alpha_\mu.$$

L'absorption du photon correspond à l'excitation dipolaire du mode collectif l'état de base intrinsèque ne changeant pas dans l'absorption en se limitant à l'hamiltonien d'ordre zéro. L'absorption fait donc passer de l'état $\psi_0(\boldsymbol{r}_1 \ldots \boldsymbol{r}_A)\,\varphi_0(\boldsymbol{\alpha})$ à l'état $\psi_0(\boldsymbol{r}_1 \ldots \boldsymbol{r}_A)\,\varphi_1(\boldsymbol{\alpha})$ et en négligeant les forces d'échange la section efficace totale intégrée est :

$$\sigma_t = \frac{\pi}{\hbar c}\sum_{\mu=\pm 1} |< \Phi_0|\mathfrak{D}_\mu|\Phi_1 >|^2 = 2\pi^2\,\frac{ZN}{A}\,\frac{e^2}{\hbar c}\left(\frac{\hbar^2}{m}\right).$$

Si l'on tient compte des forces d'échange à cause de (10) :

$$\sigma_t^* = \sigma_t(1 + 0{,}8x).$$

Cette augmentation due aux forces d'échange est la même que celle donnée par Levinger et Bethe à partir de calculs fondés sur l'utilisation de règles de somme [7].

V. Largeur de raie des noyaux magiques. — Les mouvements collectifs étant couplés aux mouvements intrinsèques par l'interaction ΔH après absorption du photon il se produit des transferts d'énergie de la structure collective à la structure intrinsèque. Ce sont ces interactions résiduelles qui sont responsables de la largeur de raie. Le mode collectif excité est donc un état quasi stationnaire dont l'énergie est absorbée par le mode intrinsèque. Nous devons donc considérer l'hamiltonien total (3) et nous désignerons par $|n' >$ l'état où le mode collectif est excité le mode intrinsèque restant dans son état de base ; $E_{n'}$ est la valeur propre correspondante ; $|n >$ est un état intrinsèque excité, E_n la valeur propre correspondante $|p >$ et $|m >$ désigneront des états quelconques de $\mathcal{H}_0$. Nous supposerons en outre que l'interaction ΔH est établie adiabatiquement depuis le temps $t = -\infty$ où elle est nulle jusqu'au temps $t = 0$ où elle vaut ΔH et

que de même elle décroît adiabatiquement jusqu'au temps $t = +\infty$ où elle s'annule. Dans la théorie des perturbations dépendantes du temps que nous utilisons [8] cela revient à remplacer les distributions qui figureront dans les résultats par les fonctions dont elles sont les limites. Nous cherchons une solution de la forme :

$$\psi(t) = \sum_p b_p(t)|p>$$

à

$$i\hbar\,\dot\psi = H(t)\,\psi$$

avec

$$H(t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}t\right)\Delta H \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}t\right).$$

Les solutions b_p vérifient :

$$i\hbar\,\dot b_p = \sum_m < p|\Delta H|m> b_m(t)\,e^{\frac{i}{\hbar}(E_p-E_m)t}$$

$$+ i\hbar\,\delta_{pn'}\,\delta(t) \text{ pour } -\infty < t < +\infty \quad (11)$$

avec les conditions initiales :

$$b_{n'}(+0) = 1 \qquad b_{n'}(-0) = 0$$

$b_p(t) = 0$ pour $t < 0$ et pour tout p $\quad b_p(0) = 0$ pour $p \neq n'$.

En passant aux transformées de Fourier :

$$\begin{cases} b_p(t) = -\dfrac{1}{2i\pi}\displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}E < p|F_E|n'> e^{\frac{i}{\hbar}(E_p-E)t} \\ i\hbar\,\delta(t) = -\dfrac{1}{2i\pi}\displaystyle\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}E\, e^{\frac{i}{\hbar}(E_{n'}-E)t} \end{cases} \quad (12)$$

les équations (11) deviennent alors :

$$(E - E_p) < p|F_E|n'>$$
$$= \sum_m < p|\Delta H|m> < m|F_E|n'> + \delta_{pn'} \quad (11')$$

et en posant :

$$< p|F_E|n'> = < p|U_E|n'>$$
$$< n'|F_E|n'> \zeta(E - E_{n'}) \text{ pour } p \neq n' \quad (13)$$

où

$$\zeta(x) = \frac{P}{x} - i\pi\,\delta(x), \qquad x\zeta(x) = 1$$

nous trouvons en calculant $< n'|F_E|n' >$ par (11′) et en utilisant (12)

$$b_{n'}(t) = e^{-\frac{\Gamma}{2\hbar}t}\,e^{-\frac{i}{\hbar}\frac{\Delta' E}{2}t} \quad (14)$$

où

$$\frac{\Gamma}{2} + i\frac{\Delta' E}{2} = \frac{I}{2}$$

$$= i\sum_{n\neq n'} < n'|\Delta H|n> \zeta\,(E - E_n) < n|U_E|n'>.$$

Nous trouvons aussi que

$$U_E = \Delta H + \Delta H\,\xi(E - \mathcal{H}_0 P_{n'})\,U_E + i\frac{I}{2} \quad (16)$$

où $P_{n'}$ est un opérateur de projection ($P_{n'}|n'> = 0$)

Le facteur périodique de (14) montre que $\Delta' E/2$ est une modification du niveau collectif excité. Le facteur exponentiel décroissant indique que $\Gamma/2$ est une mesure de la largeur de raie. On peut alors calculer $\Gamma/2$ et $\Delta' E$ en séparant les parties réelles et imaginaires de (15) et si on se limite à l'approximation ΔH pour U_E

$$\frac{\Gamma}{2} = \sum_{n\neq n'} \frac{|< n'|\Delta H|n>|^2\Gamma/2}{(E_n - E_{n'})^2 + \dfrac{\Gamma^2}{4}} \quad (17)$$

$$\Delta E = \frac{\Delta' E}{2} = \sum_{n\neq n'} \frac{|< n'|\Delta H|n>|^2}{E_{n'} - E_n}. \quad (18)$$

La théorie des perturbations indépendante du temps au deuxième ordre permet d'ailleurs de retrouver ces résultats à condition de rendre compte de la dissipation de l'excitation collective dans les modes intrinsèques en remplaçant le propagateur $1/E_{n'} - \mathcal{H}_0$ par $1/E_{n'} - \mathcal{H}_0 - \dfrac{i\Gamma}{2}$. Il en résulte que le deuxième moment nucléaire

$$M_2 = \sum_{n\neq n'} |< n'|\Delta H|n>|^2$$

est une limite supérieure de $\Gamma^2/4$. Nous sommes obligés de tenir compte ici de la condition (5). Pour cela limitons-nous au premier terme de ΔH, $\dfrac{i}{\hbar}[\boldsymbol{p}, H]\boldsymbol{\alpha}$ et prenons pour fixer les idées :

$$V = \frac{1}{2}m\omega^2\sum_{k=1}^{A} r_k^2 + v \text{ avec } v = \sum_{k=1}^{A} C\boldsymbol{l}_k\,\boldsymbol{s}_k + D\boldsymbol{l}_k^2$$

alors

$$\Delta H = \frac{i}{\hbar}\left[\boldsymbol{p}, \frac{1}{2}m\omega^2\sum_{k=1}^{A} r_k^2\right]\boldsymbol{\alpha}$$

$$+ \frac{i}{\hbar}[\boldsymbol{p}, v]\,\boldsymbol{\alpha} = M\omega^2\,\boldsymbol{\alpha}.\boldsymbol{r} + \frac{i}{\hbar}[\boldsymbol{p}, v]\,\boldsymbol{\alpha}.$$

Le premier terme est inopérant à cause de (5) et il en résulte que nous pouvons travailler avec les mauvaises fonctions d'ondes (ne satisfaisant pas à la condition de contrainte) à condition de remplacer ΔH par

$$\widehat{\Delta H} = \frac{i}{\hbar}[\boldsymbol{p}, v]\,\boldsymbol{\alpha}$$

les valeurs numériques de C et D sont tirées des schémas de Nilsson [9] ; les calculs ont été faits à partir de M_2 sur ^{16}O, ^{40}Ca, ^{90}Zr et on trouve les largeurs 2,8 MeV, 3 MeV, 4,8 MeV, ordres de grandeur tout à fait comparables aux données empiriques qui sont objectivement 4 ; 4,2 et 5 MeV à 1 MeV près. En repérant les énergies par rapport à l'état de base intrinsèque, l'énergie perturbée de l'état excité est :

$$E_1 = \hbar\omega_c + \Delta E$$

ΔE étant donné par (18).

Les valeurs calculées de ΔE pour les trois noyaux précédents sont toutes inférieures au MeV. Il est possible en partant de (18) de mettre en moyenne ΔE sous une forme différente. En supposant que les énergies en dénominateur varient peu avec les variables angulaires, nous obtenons la forme

$$\overline{\Delta E} = < 0|G \sum_{ab} \boldsymbol{r}_a \boldsymbol{r}_b|0 >$$

en moyenne sur l'état fondamental intrinsèque, G étant une constante. Tout se passe donc comme si l'énergie de perturbation ΔE était due à une interaction dipolaire additionnelle. Cette conclusion est tout à fait analogue au résultat d'Elliott [10] qui construit des mouvements collectifs de rotation en supposant chaque nucléon dans un puits d'oscillateur harmonique et en ajoutant une interaction quadripolaire de la forme

$$\sum_{ij} r_i^2 r_j^2 P_2 (\cos \theta_{ij}).$$

Cette formulation unifiée permet donc de rendre compte de la largeur de raie et il faut souligner le rôle particulièrement important joué par la condition supplémentaire sans laquelle on est conduit à des valeurs trop grandes sans sens physique. C'est là probablement la raison de l'échec de tentatives effectuées pour rattacher la largeur de raie à un couplage entre mouvements coopératifs et intrinsèques (Fujita [3]).

VI. **Largeur de raie des noyaux déformés.** — Soit Γ_0 la largeur des noyaux magiques que nous supposons aussi celle des noyaux sphériques. En effet dans ces noyaux les nucléons en plus des couches magiques contribuent à la largeur mais en même temps ils interdisent certaines transitions aux nucléons situés dans la couche immédiatement inférieure. Pour un noyau déformé nous pouvons donc écrire :

$$\Gamma = \Gamma_0 + \Delta\Gamma$$

$\Delta\Gamma$ étant la constribution due à la déformation. En considérant une déformation statique l'équation de la surface est :

$$R = R_0 \left[1 + \frac{\lambda}{2} (3 \cos^2 \theta - 1)\right]$$

et les surfaces équipotentielles vérifient :

$$\frac{\beta(x^2 + y^2)}{R^2} + \frac{Z^2}{\beta^2 R_0^2} = 1 \quad \text{avec} \quad \beta = 1/(1 - \lambda)$$

en supposant la déformation à volume constant. Aux coordonnées x, y, z du noyau, sphérique vont correspondre les coordonnées $\beta^{1/2} x$, $\beta^{1/2} y$, $(1/\beta) z$ du noyau déformé et :

$$\mathcal{H}_c^0 = \frac{1}{2M} \pi^2 + \frac{1}{2} M \omega_c^2 \left[\beta(\alpha_x^2 + \alpha_y^2) + \frac{1}{\beta^2} \alpha^2\right]$$

d'où deux fréquences longitudinales et transversales $\omega_{c,l}$ et $\omega_{c,t}$

$$\hbar\omega_{c,l} = \hbar\omega_c(1 - \lambda)$$

$$\hbar\omega_{c,t} = \hbar\omega_c[1 + (\lambda/2)]$$

et $\Delta\Gamma = \hbar(\omega_{c,t} - \omega_{c,l})$. Il y aura dédoublement quand $\Delta\Gamma > \frac{\Gamma_0}{2}$ ce qui est le cas de ^{181}Ta ; quand $\Delta\Gamma < \Gamma_0/2$ on n'observera qu'un élargissement de la raie de résonance. En exprimant λ à partir du moment quadripolaire Q_0 calculé en supposant la densité de la matière nucléaire constante dans le noyau :

$$\Delta\Gamma = \frac{5}{4} \frac{Q_0}{Z R_0^2}.$$

Les résultats numériques que nous obtenons sont en bon accord avec l'expérience. Notre formalisme est ici analogue à celui d'Okamoto [11].

VII. **Émission de particules par effet direct.** — Dans notre formalisme cette émission se fait en deux stades : Absorption du photon par le mode collectif ; décomposition dans le mode intrinsèque avec excitation d'un nucléon émis dans le continuum. On peut encore utiliser la théorie des perturbations dépendantes du temps $|0>$ sera l'état initial de valeur propre E_γ (E_γ est l'énergie du photon incident si on mesure les énergies à partir de l'état de base du noyau) ; $|n'>$ est l'état collectif excité ; $|n>$ l'état du nucléon excité. L'hamiltonien du problème est :

$$\mathcal{H}_0 + \Delta H + H_\gamma$$

où H_γ est l'interaction du photon avec le noyau.

$$H_\gamma = e \sqrt{2\pi E_\gamma} \frac{ZN}{A} \boldsymbol{\alpha}$$

en normalisant à un flux incident de un photon par cm² par sec. Le calcul de $b_0(t)$ amplitude de probabilité de l'état $|0>$ permet en particulier de calculer la section efficace totale d'absorption du photon.

$$\sigma(\gamma) = 2\pi^2 \frac{e^2}{\hbar c} \cdot \frac{ZN}{A} \cdot \frac{\hbar^2}{m} \cdot \frac{E_\gamma}{\hbar\omega_c} \cdot \frac{(\Gamma/2\pi)}{(E_\gamma - \hbar\omega_c)^2 + (\Gamma^2/4)}$$

et nous retrouvons la section efficace totale intégrée en intégrant sur toutes les énergies E_γ.

Nous appellerons $n_0\, l_0\, m_0$ les nombres quantiques du nucléon dans son état fondamental, n, l, m les nombres quantiques qui correspondent au nucléon excité. N, R, Λ sont les nombres quantiques collectifs et

$$|\psi> = \psi_{nl}(r) \sum_{\Lambda m} < lRm\, \Lambda|IM > Y_{lm}(\theta, \varphi)|NR\, \Lambda >$$

est une fonction propre de $\mathcal{H}_0$. $\psi_{nl}(r)$ est la fonction d'onde radiale du nucléon. Nous considérons le

phénomène pour $t \to \infty$ c'est-à-dire physiquement pour des temps t tels que $\Gamma t/2\hbar \gg 1$ où on est certain que le mode collectif excité s'est décomposé dans le mode intrinsèque. A ce moment R étant le rayon de la voie de sortie pour $r > R$ on peut écrire la fonction d'onde

$$|\psi> = \sum S_l \, \psi_{nl}^{+}(k_l \, r)|l \, ; \, 00 \, ; \, lm > e^{-\frac{i}{\hbar}E_n t}. \quad (19)$$

S_l est l'amplitude pour l'absorption du photon avec émission du nucléon dans la voie « l », k est le nombre d'onde du nucléon émis. Pour $r < R$

$$|\psi> = b_n(t \to \infty) \, \psi_{nl}(Kr)|l \, ; \, 00 \, ; \, lm > e^{-\frac{i}{\hbar}E_n t}. \quad (19')$$

A partir de (19) et (19')

$$S_l = \frac{1}{\psi_{nl}^{+}(kR)} \, b_n(t \to \infty) \, \psi_{nl}(KR) \quad (20)$$

où K est le nombre d'onde interne du nucléon.

$$\sigma_l = \frac{1}{2l_0+1} \sum_{m_0} |S_l|^2. \quad (21)$$

Il n'y a que deux transitions possibles $l_0 \to l_0 + 1$ ou $l_0 \to l_0 - s$ la distribution angulaire totale calculée à partir de (20) contient des termes d'interférences entre ces deux types de transition et est de la forme $a + b \sin^2 \theta$. Ces termes d'interférence permettent au rapport b/a d'être négatif ce qui va dans le sens des expériences de Spicer sur ^{16}O. Par ailleurs les sections efficaces calculées au voisinage de la résonance sont :

$$\sigma_{l_0 \to l_0+1} = \frac{10\pi}{3} \frac{e^2}{\hbar C} \left(\frac{ZN}{A} t\right)^2 \frac{\Gamma_{l_0+1} \, \hbar\omega_c}{(E_n - E_{n'})^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} D^2_{l_0+1} \frac{l_0+1}{2l_0+1}$$

$$\sigma_{l_0 \to l_0-1} = \frac{10\pi}{3} \frac{e^2}{\hbar C} \left(\frac{ZN}{A} t\right)^2 \frac{\Gamma_{l_0-1} \, \hbar\omega_c}{(E_n - E_{n'})^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} D^2_{l_0-1} \frac{l_0}{2l_0+1} \quad (21)$$

où $t = 1/Z$ ou $-1/N$ suivant que la particule émise est un proton ou un neutron.

$$D_{l_0+1} = \int \psi_{l_0}^{*} \, r^3 \, \psi_{l_0+1} \, dr$$

a été tabulé par Wilkinson [2]

$$\Gamma_l = \frac{\hbar^2 k_l}{m} v_l \, R^2 \, \psi_l(KR)$$

est la largeur d'émission de la particule, v_l le facteur de pénétration. Dans tous nos calculs nous avons idéalisé les mouvements du nucléon dans le noyau en l'assimilant à celui d'une particule plongée dans un puits de potentiel. Une confrontation avec l'expérience a été faite sur ^{27}Al (γ, n (12). Nous trouvons un bon accord qualitatfi

Conclusion. — Ce type de formulation unifiée présente donc un intérêt méthodologique certain. Ce modèle n'introduit plus empiriquement les paramètres de la dynamique collective mais les exprime à l'aide de grandeurs caractérisant les mouvements des nucléons et leurs interactions. L'emploi simultané du modèle des couches considéré comme « structure modèle intrinsèque » et du modèle collectif pur permet l'interprétation et le calcul simple de la largeur de raie. Il permet aussi de retrouver des résultats équivalents à ceux de Wilkinson dans le phénomènç d'émission directe. Enfin il convient de souligner le rôle très important joué par la condition supplémentaire.

Cette étude m'a été suggérée par M. le Pr Maurice Jean. Les discussions que nous avons eues tout au long de son élaboration m'ont grandement aidé. Je tiens à l'en remercier vivement. Je remercie également le Centre National de la Recherche Scientifique dont les allocations m'ont permis de mener ce travail à bonne fin.

Manuscrit reçu le 30 juin 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Goldhaber-Teller, *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 2046. Steinwedel-Jensen, *Teits f. Naturfors*, 1950, 5a, 413. Ferentz-Gell-Mann, *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 836.
[2] Burkhardt, *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 420. Wilkinson, *Physica*, 1956, XXII, 1039-1061.
[3] Brink, *Nuclear Physics*, 1957, **215**. Fujita, *Prog. Theor. Physics*, 1956, **16**, n° 2.
[4] Jean et Touchard, *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 1001.
[5] Monsonego, *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **248**, 1633.
[6] Blatt et Jackson, *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 18. Salpeter, *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 60.
[7] Levinger et Bethe, *Phys. Rev.*, 1950, **78**, 115.
[8] Heitler, Quantum Theory of Radiation.
[9] Nilsson, Prinding States of Individual Nucleon in Strongly Deformed Nuclei.
[10] Elliott, *Proc. Roy. Soc.*, 1958, A **245**, 128.
[11] Okamoto, *Prog. Theor. Physics*, 1956, **15**, 75.
[12] Ferrero Malvano, Menardi et Terracim, *Nuclear Physics*, 1958-1959, 9, n° 1, 32.

SUR LA THÉORIE STATISTIQUE DES CHAMPS NON LINÉAIRES

Par J. P. TERLETSKY,
Professeur à l'Université de Moscou (1).

Résumé. — On introduit une distribution de probabilités canoniques et microcanoniques pour un champ non linéaire classique arbitraire. On trouve les expressions de la densité fonctionnelle de probabilité pour les lignes d'univers qui représentent les solutions du genre particule des équations non linéaires du champ. On montre que la formulation de Feynmann de la mécanique quantique n'est qu'un cas particulier d'une distribution canonique générale avec une température imaginaire. Cette température est interprétée comme la température statistique d'un thermostat formé de particules ayant des masses imaginaires. La constante de Planck représente alors une grandeur proportionnelle à la température du thermostat « imaginaire ».

Abstract. — The canonical and microcanonical distributions of probabilities are introduced for an arbitrary classical, non-linear field. The expressions of the functional density of probability of the lines of u iverse are found, which give the particle-like solutions, of the non-linear field equations. The Feynmans formulation of quantum mechanics is only a special case of a general canonical distribution, with an imaginary temperature. That temperature is interpreted as the statistical temperature of a thermostat constituted of particles having imaginary masses. The Planck constant is then a factor proportional to the temperature of the "imaginary" thermostat.

I. **La distribution microcanonique.** — Examinons l'ensemble des champs classiques $\Psi_1(x_0, x_1, x_2, x_3)$, $\Psi_2(x_0, x_1, x_2, x_3)$, ..., $\Psi_N(x_0, x_1, x_2, x_3)$ dont les équations du mouvement sont obtenues à partir du principe de moindre action :

$$S = \int \mathfrak{L}\left[\psi_1, \psi_2, \ldots, \psi_N ; \frac{\partial\psi_1}{\partial x_0}, \frac{\partial\psi_1}{\partial x_1}, \ldots, \frac{\partial\psi_N}{\partial x_3}\right] dx_0\, dx_1\, dx_2\, dx_3 = S_m \quad (1)$$

où $\mathfrak{L}$ est le lagrangien du système, S_m est la valeur extrêmale de l'action S.

En examinant du point de vue statistique cet ensemble de champs il est indispensable d'associer à chaque champ possible une certaine probabilité, *a priori*, ou plus exactement, une densité de probabilité dans l'espace fonctionnel.

La plus simple des distributions de probabilité qui élimine les champs qui ne vérifient pas les équations du mouvement et qui donnent des valeurs équiprobables à toutes les solutions possibles des équations du mouvement est évidemment la distribution.

$$W = A(S_m)\,\delta\left[S_m - S\left\{\psi, \frac{d\psi}{\partial x}\right\}\right], \quad (2)$$

où δ est une fonction de Dirac, Ψ et $\partial\Psi/\partial x$ sont l'ensemble de tous les champs et de leurs dérivées, mis sous une forme abrégée, A est une constante de normalisation qui est en général une fonctionnelle car S_m dépend de l'énergie totale et des différents invariants intégraux (par exemple la charge totale).

Par analogie avec la mécanique statistique classique on peut appeler la distribution (2) distribution *microcanonique*.

Il est évident que les valeurs moyennes de toutes grandeurs physiques $F\{\Psi(x)\}$ sont définies par des intégrales fonctionnelles (2)

$$\overline{F} = \int F\{\psi(x)\}\, W\{\psi(x)\}\, d\psi(x). \quad (3)$$

Nous représentons par X l'ensemble des quatre coordonnées de Minkowski x_0, x_1, x_2, x_3 et nous utiliserons des accolades uniquement pour les arguments des fonctionnelles. Pour les arguments des fonctions nous utiliserons seulement des parenthèses ou des crochets.

La probabilité pour qu'une certaine fonction du champ $Q[\Psi(x)]$ ait une forme donnée $q(x)$ sera évidemment déterminée par l'intégrale

$$W\{q(x)\} = \int \delta\{q(x) - Q[\psi(x)]\}\, W\{\psi(x)\}\, d\psi(x), \quad (4)$$

où $\delta\{y(x)\}$ est une fonctionnelle δ définie par l'équation :

$$F\{\eta(x)\} = \int \delta\{y(x) - \eta(x)\}\, F\{y(x)\}\, dy(x). \quad (5)$$

Il est évident que l'on peut déterminer cette fonctionnelle sous la forme

$$\delta\{y(x)\} = \int \left[\exp i \int 2\pi\xi(x)\; y(x)\; dx\right] d\xi(x). \quad (6)$$

(1) Actuellement en mission au Service des Théories Physiques de l'Institut Henri-Poincaré.

(2) Nous utiliserons ici pour l'intégrale fonctionnelle les notations que nous avons introduites en 1945 dans notre thèse de Doctorat publiée sous une forme abrégée en 1949 [1].

II. **La distribution canonique.** — Si un certain ensemble de champs $\chi(x)$ parmi ceux qui ont été examinés ci-dessus (ou bien une certaine classe des solutions des équations du mouvement) peut être rattaché à un thermostat c'est-à-dire si l'on peut ne pas considérer les grandeurs utilisées dans ce problème physique alors les autres champs $\varphi(X)$ qui nous intéressent dans ce problème peuvent être donnés par une distribution *canonique* :

$$W = B \exp [bS \{ \varphi(x) \}] \qquad (7)$$

où b est une constante numérique, B est une constante de normalisation qui est une fonction de b et des paramètres figurant dans S.

De même, qu'en mécanique statistique la distribution (7) peut être obtenue à partir de (2) en utilisant quelques hypothèses simplificatrices naturelles.

En effet, si l'ensemble des champs Ψ peut être partagé en deux sous-ensembles φ et χ, et si l'on ne se préoccupe pas de la seconde, la densité fonctionnelle de probabilité pour les champs φ d'après (2) doit être de la forme :

$$W \{ \varphi(x) \} = A \{ S_m \} \int \delta [S_m - S \{ \varphi(x), \chi(x) \}] \, d\chi(x). \qquad (8)$$

Pour un système de champs interagissant faiblement on peut poser de façon approchée :

$$S \{ \varphi(x), \chi(x) \} = S_1 \{ \varphi(x) \} + S_2 \{ \chi(x) \} \qquad (9)$$

alors, d'après (8), il vient :

$$W \{ \varphi(x) \} = \Phi [S_m - S_1 \{ \varphi(x) \}] \qquad (10)$$

où $\Phi(y)$ est une fonction déterminée par les probabilités du « thermostat » et qui est

$$\Phi(y) = A \int \delta [y - S_2 \{ \chi(x) \}] \, d\chi(x). \qquad (11)$$

La fonction Φ est évidemment donnée, à une constante multiplicative près, constante qui est définie à partir des conditions de normalisation

$$\int W \int \{ \varphi(x) \} \, d\varphi(x) = 1. \qquad (12)$$

La fonction Φ peut être évidemment calculée à partir de la formule (11) en se donnant la forme de $S_2 \{ \chi(x) \}$. Cependant sa forme est déterminée univoquement si en plus de l'hypothèse (9) on admet que cette fonction a un caractère universel et ne dépend pas de la forme des fonctionnelles d'action des autres champs interagissant avec le « thermostat ». Dans ce cas, deux champs n'interagissant pas entre eux mais faiblement liés avec le thermostat ([3]), doivent vérifier la condition :

$$\Phi [(S' + S'') - S_1 \{ \varphi_1(x) \} - S_2 \{ \varphi_2(x) \}] = \Phi [S' - S_1 \{ \varphi_1(x) \}] . \Phi [S'' - S_2 \{ \varphi_2(x) \}] \qquad (13)$$

car les systèmes $\varphi_1(x)$ et $\varphi_2(x)$ peuvent être considérés comme statistiquement indépendants. Mais la seule solution de l'équation fonctionnelle (10) est évidemment une fonction exponentielle (7).

III. **Les paradoxes de la théorie statistique des champs linéaires.** — Si l'ensemble de champs qui nous intéresse $\varphi(X)$ obéit à des équations du mouvement linéaires c'est-à-dire si le lagrangien $\mathfrak{L}$ est une fonction quadratique de ces champs et de leurs dérivées, la distribution (7) nous conduit à un paradoxe que l'on appelle « la catastrophe ultraviolette » et qui fait que l'énergie du champ, même pour un domaine fermé, tend vers l'infini à cause de sa distribution uniforme suivant les ondes monochromatiques de toutes les fréquences. Si l'on prend la distribution (2) au lieu de la distribution (7), le paradoxe demeure en ne changeant que sa forme. Dans le cas d'une distribution microcanonique (2) ayant une énergie finie, l'énergie de toute onde monochromatique tend vers zéro et ne peut être différente de zéro que si l'énergie totale est infinie ([4]).

IV. **Les possibilités de la théorie des champs non linéaires.** — Il en est autrement dans le cas non linéaire lorsque le lagrangien est par exemple la somme de termes quadratiques et de termes d'ordre pair plus élevé. Dans ce cas, pour une certaine classe de lagrangiens, parmi les solutions ayant un sens physique et ayant une énergie, une charge, etc. finies, il existe des solutions du genre particules (cf. par ex. : [2]) présentant des concentrations de champs stables (paquets).

Pour de tels lagrangiens non linéaires, on peut bien entendu, avoir aussi des solutions sous forme d'ondes monochromatiques de faible amplitude, car pour de faibles amplitudes les équations d'ondes deviennent linéaires. Cependant, les solutions qui existent dans le cas linéaire sous forme de sommes d'ondes monochromatiques de toutes les fréquences et d'amplitudes approximativement égales ([5]) sont interdites dans le cas non linéaire car de telles solutions supposent des concentrations du champ en forme de fonctions δ, de brève durée d'existence et d'amplitude maximale aussi grande que l'on veut. Ces dernières solutions sont impossibles, car, dans notre problème non linéaire, les seules solutions possibles avec une énergie bornée sont des solutions du genre particule, aves des valeurs bornées du champ [2].

([3]) La liaison ne doit pas être nulle mais suffisamment faible pour que les conditions (9) soient approximativement réalisées.

([4]) Il est bien connu que ces difficultés sont évitées en seconde quantification. Le but de cet article est l'étude des possibilités de la théorie statistique des champs classiques. Ce n'est qu'à la fin de cet article que nous montrerons la relation entre théorie classique et quantique.

([5]) Ces solutions sont la cause des « catastrophes ultraviolettes » car si l'on avait une limitation du spectre du côté de courtes longueurs d'ondes il n'y aurait pas non plus de divergences.

Si nous examinons le cas d'un champ que rien ne limite dans l'espace et si nous considérons son énergie et certains invariants intégraux finis, seules les solutions du genre particule ont un sens physique. Toutes les autres solutions sont de la forme de paquets d'ondes quasi linéaires qui s'étalent rapidement sur tout l'espace et dont l'amplitude tend par conséquent vers zéro.

Ainsi, pour les lagrangiens non linéaires admettant des solutions du genre particule si l'on impose que l'énergie et certains invariants intégraux soient finis, toutes celles qui sont possibles d'après le principe de moindre action seront pratiquement concentrées au voisinage des lignes d'univers représentant le mouvement des maxima du genre particule. Mais dans ce cas la fonctionnelle d'action du champ peut aussi être représentée comme la somme des intégrales sur l'ensemble des lignes d'univers de certaines trajectoires fonctionnelles qui s'appellent aussi en mécanique, fonctionnelles d'action. C'est-à-dire que l'on peut poser :

$$S\{x(t)\} = \int L[x(t), x'(t)]\,dt, \qquad (14)$$

où $x(t)$ représente toutes les lignes d'univers, c'est-à-dire $x_1(t)$, $x_2(t)$, ..., $x_k(t)$, ... et chaque $x_k(t)$ représentent les trois coordonnées d'espace en fonction du temps d'une ligne d'univers k.

V. La probabilité des trajectoires des solutions du genre particules.

— Il est évident que pour de tels champs non linéaires la densité des probabilités peu être représentée non comme une fonctionnelle de tout le champ mais comme une fonctionnelle des lignes d'univers représentant le mouvement des maxima des solutions du genre particule. D'après (2) et (14) nous obtenons la distribution microcanonique

$$W\{x(t)\} = A\,\delta[S_m - S\{x(t)\}] \qquad (15)$$

et d'après (4) et (11) la distribution canonique

$$W\{x(t)\} = B \exp [bS\{x(t)\}] \qquad (16)$$

comme distribution du système dans le thermostat.

La valeur moyenne de toute grandeur $F\{x(t)\}$ sera évidemment déterminée d'après la formule :

$$\overline{F} = \int F\{x(t)\}\,W\{x(t)\}\,dx(t). \qquad (17)$$

A l'aide d'une formule analogue on peut également calculer la probabilité d'une valeur d'une grandeur physique à un instant donné. C'est ainsi par exemple que la densité de probabilité d'une valeur des coordonnées x à l'instant t est donnée par la formule

$$W(x, t) = \int \delta[x - x(t)]\,W\{x(\tau)\}\,dx(\tau). \qquad (18)$$

On obtient facilement, à partir de l'expression (16) la densité de probabilité d'une configuration de N points matériels : $q_1, q_2, \ldots, q_{3N}$ par exemple. Pour cela il faut intégrer (16) suivant l'ensemble des lignes d'univers $x(t)$ passant par la configuration de points donnée en cet instant. Autrement dit il faut calculer l'intégrale fonctionnelle (18).

A l'approximation non relativiste le lagrangien du système est égal à la différence entre l'énergie cinétique et potentielle du système. En portant un tel lagrangien dans (16) et en intégrant par rapport à tous les $x(t_K)$ sauf un $x(t_0)$ donné on obtient :

$$W(q_1, q_2, \ldots, q_{3N}) = \exp [\tau b(\Psi - U)], \qquad (19)$$

où U est l'énergie potentielle du système, τ est l'intervalle de temps minimum qu'il faut introduire pour effectuer pratiquement l'intégration fonctionnelle et Ψ est une constante déterminée à partir des conditions de normalisation. Si l'on pose $\tau b = 1/\Theta$ où $\Theta = kT$ c'est-à-dire la constante de Boltzman multipliée par la température, l'expression (19) est équivalente à la distribution canonique de Gibbs.

VI. La mécanique quantique en tant que théorie statistique des systèmes ayant une température imaginaire.

— Le cas particulier où dans la distribution (16) la constante b a une valeur imaginaire, présente un intérêt particulier. Si l'on met une telle distribution sous la forme

$$W\{x(t)\} = B \exp \left[\frac{i}{\hbar} S\{x(t)\}\right] \qquad (20)$$

on verra facilement que les valeurs moyennes des grandeurs physiques calculées à partir de la formule (17) avec la distribution (20) coïncide avec les *valeurs moyennes quantiques* de ces grandeurs si $\hbar$ est la constante de Planck divisée par 2π.

En effet, dans le cas non relativiste, l'intégrale de l'expression (20) prise sur toutes les trajectoires d'espace-temps passant par ce point et provenant de points antérieurs est égale à la fonction d'onde $\Psi(q_1, q_2, \ldots, q_{3N}, t)$ comme cela a été montré par Feynman [3]. Tandis que l'intégrale de (20) prise sur toutes les trajectoires issues du point considéré à tous les instants ultérieurs est égale à $\Phi^*(q_1, q_2, \ldots, q_{3N}, t)$. Mais d'après nos règles (16), (17), (18), l'expression (20) doit être forcément intégrée suivant toutes les trajectoires provenant de $t = -\infty$ et allant à $t = +\infty$, c'est-à-dire que la probabilité de la configuration donnée est égale au produit $\Psi\Psi^*$, c'est-à-dire à la probabilité de la mécanique quantique.

De façon analogue, ainsi que l'a montré Riazanov [4] on peut calculer la densité de probabilité de l'impulsion et des autres grandeurs physiques en supposant que l'expression (20) est la probabilité des trajectoires données partant de $t = -\infty$ et allant à $t = +\infty$. Il est important de noter que les grandeurs physiques F dont les probabilités et les valeurs moyennes sont calculées à partir de (17),

(18), (20), doivent être considérées comme des grandeurs classiques.

Il n'est pas nécessaire d'introduire les opérateurs et les autres notions spécifiques de la théorie quantique orthodoxe. Toute la théorie peut opérer à partir de notions purement classiques et obtenir *tous* les résultats de la mécanique quantique.

De sorte que tous les résultats de la théorie quantique sont obtenus comme conséquence d'une théorie statistique générale du champ non linéaire classique ayant des solutions du genre particule si l'on admet que ce champ se trouve en équilibre statistique avec un thermostat ayant une température *imaginaire* (puisque la constante b peut être considérée comme une grandeur inversement proportionnelle à la température).

La seule différence entre cette théorie statistique et la théorie orthodoxe consiste en ce que la formule (20) n'est valable que dans la mesure où nous partageons la trajectoire en parties grandes par rapport aux dimensions de la particule (c'est-à-dire par rapport aux dimensions du maximum des solutions du genre particules). Pour des intervalles plus petits la probabilité des trajectoires perd sa signification car il faut utiliser la probabilité d'une distribution de champ donnée à l'intérieur de la particule. Dans la théorie orthodoxe on considère que les postulats de la mécanique quantique sont valables pour des intervalles arbitrairement petits. Et par suite on admet que la formule (20) est rigoureuse même pour des intervalles bien plus petits que les dimensions de la particule.

De sorte que la différence entre la mécanique quantique habituelle et la théorie statistique du champ non linéaire avec un thermostat « imaginaire » ne peut être déterminée expérimentalement qu'en étudiant la structure interne des particules élémentaires.

VII. Signification physique de la température imaginaire.

— On peut se poser alors deux questions importantes :

1° quel est le sens physique d'une température imaginaire ?

2° qu'est-ce qui assure la constance de cette température ?

Étant donné que la première question est fondamentalement physique, nous allons l'examiner dans le cas le plus simple. Examinons un gaz de particules relativistes de masses identiques m qui soit en équilibre avec le thermostat.

La distribution de Gibbs (canonique ou microcanonique) aura pour un tel gaz la forme :

$$W(\boldsymbol{P}_1, \boldsymbol{P}_2, \ldots, \boldsymbol{P}_N) = \varphi\left(\alpha_0 \sum_K \varepsilon_K\right) \qquad (21)$$

où $\boldsymbol{P}_K$ est l'impulsion d'une particule,

$$\varepsilon_K = \sqrt{\boldsymbol{P}_K^2 + m^2}$$

son énergie (on a pris les unités telles que $c = 1$), et $\alpha_0 = 1/\Theta$ est un coefficient inversement proportionnel à la température. La fonction φ sera exponentielle pour la distribution canonique et une fonction delta pour la distribution microcanonique. Dans un autre système de référence, l'argument de la fonction φ sera évidemment

$$\alpha \sum_K \varepsilon_K - \boldsymbol{\beta} \sum_K \boldsymbol{P}_K \qquad (22)$$

où $\boldsymbol{\beta}$ et α constituent le quadrivecteur température inverse. Pour des particules habituelles dont le quadrivecteur $(\boldsymbol{P}_K, \varepsilon_K)$ est du genre temps, le quadrivecteur température inverse doit être, lui aussi, du genre temps, afin que la distribution prenne la forme habituelle de la distribution de Gibbs dans le système au repos. On peut cependant imaginer des particules dont le quadrivecteur impulsion est du genre espace.. Leur masse au repos

$$m = \sqrt{\varepsilon^2 - \boldsymbol{P}^2}$$

sera donc imaginaire. D'après (22), il paraît alors raisonnable de leur attribuer un quadrivecteur température inverse, qui sera lui aussi du genre espace et donc d'introduire une température *imaginaire* définie par

$$\frac{1}{\Theta} = i\beta_0 = \sqrt{\alpha^2 - \beta^2}.$$

Pour de tels systèmes, la fonction de distribution f, c'est-à-dire la densité moyenne de particules dans l'espace des moments peut être représentée comme une fonction de $(\boldsymbol{\beta}_0 \boldsymbol{P})$, c'est-à-dire comme une fonction de la température imaginaire ([6]).

Le problème de savoir s'il est possible d'admettre des particules de masse imaginaire a déjà été posé dans notre précédent article [5]. Nous avons montré que la théorie de la relativité et le deuxième principe de la thermodynamique n'interdisent pas l'existence de telles particules, cependant ces particules ne peuvent pas transporter d'entropie négative comme le font les particules de masse réelle.

Ainsi la « température imaginaire » peut être introduite pour décrire un ensemble statistique de particules ayant des masses imaginaires. Mais, comme nous l'avons vu plus haut, le coefficient de la distribution (16) est inversement propor-

([6]) Il convient de noter que la fonction de distribution ainsi obtenue est anisotrope. On peut cependant trouver une distribution isotrope qui serait la somme de distributions à températures inverses égales en module mais ayant toutes les orientations possibles. Si toutes les orientations sont présentes avec un poids égal, la distribution obtenue ainsi sera une fonction symétrique de $\beta_0 \boldsymbol{P}$, c'est-à-dire, du module de l'impulsion divisé par la température imaginaire. Il importe de remarquer que pour une telle distribution, les moyennes de l'énergie et de l'impulsion sont nulles bien que leurs moyennes quadratiques ne le soient pas.

tionnel à la température du thermostat. Si celle-ci est imaginaire, le coefficient b du système lié à ce thermostat, doit être aussi imaginaire. Par suite, nous supposons que le thermostat est un système de particules de masses imaginaires ou bien, en utilisant la terminologie de la théorie des champs, nous dirons qu'on rapporte au thermostat toutes les solutions du genre particules qui ont un quadrivecteur d'impulsion du genre espace, nous aurons alors un coefficient b imaginaire dans la distribution (16).

L'hypothèse d'un « thermostat imaginaire » explique aussi le fait que la température imaginaire est constante. En effet, d'après [5] les particules de masse imaginaire ne peuvent pas transporter d'entropie. Par suite l'entropie d'un système réel interagissant avec un « thermostat imaginaire » ne peut varier quelle que soit l'énergie du système réel. De sorte que l'hypothèse que le monde qui nous entoure est rempli de particules de masses imaginaires ayant une température imaginaire constante est admissible du point de vue physique et ne présente pas de contradiction interne.

Il faut s'arrêter encore sur la question de la signification physique et mathématique d'une densité de probabilité fonctionnelle *complexe* (20). Cette question s'est déjà posée dans [4] et on a essayé de l'éviter en remplaçant les exponentielles par un cosinus. Cependant de cette façon on n'arrive pas à éviter des probabilités négatives.

Un problème analogue se pose dans la mécanique quantique habituelle quand on introduit une densité de probabilité non dans l'espace de configuration mais l'espace des phases (cf. par ex. [7] et [8]). Là aussi la densité de probabilité est en général complexe ou négative.

Il est évident que la densité de probabilité fonctionnelle (20) ne doit être considérée que comme une probabilité formelle ou *quasi probabilité*, c'est-à-dire comme une grandeur qui permet, à l'aide des formules habituelles de la théorie des probabilités (ici la formule (17)), de calculer les valeurs moyennes ou les densités de probabilité des grandeurs qui sont mesurées directement par l'expérience.

Une telle quasi probabilité peut être complexe ou négative si les probabilités des grandeurs physiques mesurables ainsi obtenues sont réelles et positives. Cette dernière condition est évidemment vérifiée pour les probabilités des grandeurs mécaniques habituelles calculables à partir des formules (20), (17), (18).

VIII. **La quantification en tant que conséquence de la statistique relativiste d'un champ non linéaire.** — Ainsi tous les effets quantiques peuvent être considérés comme le résultat de l'interaction d'un système classique ayant une masse propre réelle avec un thermostat « imaginaire » c'est-à-dire avec un système formé de particule ayant des masses imaginaires et qui se trouve en équilibre statistique. La constante de Planck a alors la signification d'une grandeur proportionnelle à la température d'un thermostat « imaginaire » multipliée par une constante qui a les dimensions d'un temps.

Cette constante de temps est égale à une constante de longueur divisée par c. La constante de longueur est évidemment égale à celle qui figure dans les termes non linéaires des équations de champ (par exemple « l » dans l'équation d'Heisenberg [9]) car elle définit les dimensions des solutions du genre particule c'est-à-dire les dimensions linéaires des particules élémentaires. De sorte que le nombre de constantes absolues dans cette théorie n'est pas plus grand que celui qui figure dans la mécanique quantique car la température du thermostat imaginaire peut être considérée comme une grandeur relative dépendant de l'état de notre parcelle d'univers. Dans les autres théories de la structure des particules élémentaires (cf. [9] par exemple) la constante de longueur est introduite comme une constante absolue complémentaire à côté de la constante *absolue* de Planck.

De ce point de vue toute la mécanique quantique n'est qu'une théorie statistique relativiste du champ non linéaire, en tenant compte des états qui correspondent aussi bien aux particules ayant une masse réelle qu'aux particules ayant une masse imaginaire. Les idées déterministes de Einstein et de Louis de Broglie se trouvent ainsi mises sous une nouvelle forme.

En conclusion je voudrais remercier M. Louis de Broglie pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail ainsi que Jean Pierre Vigier et Georges Lochak pour des discussions amicales fructueuses.

Manuscrit reçu le 1er juin 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Terletsky (J.), « Les lois dynamiques et statistiques de la Physique », Moscou, 1949.
[2] Glasko (V.), Leruste (P.), Terletsky (J.) et Chouchourine (S.), *JETP*, 1958, **35**, 425.
[3] Feynman (R.), *Rev. Mod. Physics*, 1948, **20**, 367.
[4] Riazanov (C.), *JETP*, 1958, **35**, 121.
[5] Terletsky (J.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 681.
[6] Terletzky (J.), *Doklady Acad. Nauk* URSS, 1960, **133**, 329.
[7] Terletsky (J.), *JETP*, 1937, **7**, 1290.
[8] Moyal (J.), *Proc. Cambr. Phil. Soc.*, 1949, **45**, 99.
[9] Heisenberg (W.), Dürr (H.), Mitter (H.), Schlieder (S.) et Yamazaki (K.), *Z. Naturforsch.*, 1959, **14**a, 441.

SUR LE CALCUL DES ÉNERGIES PERTURBÉES D'ORDRE QUELCONQUE

Par Françoise DUPONT-BOURDELET, Jacques TILLIEU et Jean GUY.
Institut de Physique de la Faculté des Sciences de Lille
et Groupe de Chimie Théorique de l'École Polytechnique.

Résumé. — L'énergie perturbée d'ordre n peut être exprimée à l'aide des seules fonctions perturbées d'ordre inférieur ou égal à $n/2$ pour n pair, ou $(n-1)/2$ pour n impair. On généralise ainsi un résultat obtenu par Dalgarno et Stewart [1].

Abstract. — The perturbation energy of nth order can be calculated when the perturbation functions are known up to the order $n/2$ for n even, or $(n-1)/2$ for n odd. This is a generalization of a former result obtained by Dalgarno and Stewart [1].

Dalgarno et Stewart ont montré [1] que, pour calculer l'énergie perturbée d'ordre $2n+1$ correspondant à un hamiltonien de la forme $H^{(0)} + \lambda H^{(1)}$, il suffit de connaître les fonctions perturbées jusqu'à l'ordre n. Nous allons généraliser ce résultat à un hamiltonien de degré quelconque en λ.

Considérons un système quantique régi par l'équation de Schrödinger

$$H\psi = E\psi \qquad (1)$$

ou, en notations de Dirac

$$H|\psi > = E|\psi >, \qquad (1')$$

système pour lequel l'hamiltonien total H a la forme

$$H = H^{(0)} + \lambda H^{(1)} + \lambda^2 H^{(2)} + \ldots + \lambda^n H^{(n)} + \ldots \qquad (2)$$

λ est le paramètre de perturbation et $H^{(n)}$ désigne l'hamiltonien perturbateur d'ordre n.

Conformément à la méthode des perturbations [2], nous écrivons l'énergie E sous la forme

$$E = E^{(0)} + \lambda E^{(1)} + \lambda^2 E^{(2)} + \ldots + \lambda^n E^{(n)} + \ldots \qquad (3)$$

et la fonction d'onde sous la forme

$$\psi = \psi^{(0)} + \lambda\psi^{(1)} + \lambda^2 \psi^{(2)} + \ldots + \lambda^n \psi^{(n)} + \ldots \qquad (4)$$

soit encore, pour le vecteur *ket* correspondant

$$|\psi > = |0 > + \lambda|1 > + \lambda^2|2 > + \ldots + \lambda^n|n > + \ldots \qquad (4')$$

En portant (2), (3) et (4′) dans (1′), et en égalant les termes de même degré en λ, nous obtenons, si nous voulons déterminer l'énergie perturbée d'ordre n, $E^{(n)}$, le système de $n+1$ équations successives

$$\sum_{m=0}^{j} (H^{(m)} - E^{(m)})|j - m > = 0 \quad (j = 0, 1, \ldots, n) \qquad (5)$$

soit, sous forme plus explicite

$$(H^{(0)} - E^{(0)})|0 > = 0 \qquad (5\,;\,0)$$

$$(H^{(0)} - E^{(0)})|1 > + (H^{(1)} - E^{(1)})|0 > = 0 \qquad (5\,;\,1)$$

. . . .

$$(H^{(0)} - E^{(0)})|j > + \sum_{m=0}^{j-1} (H^{(j-m)} - E^{(j-m)})|m > = 0 \qquad (5\,;\,j)$$

. . . .

$$(H^{(0)} - E^{(0)})|n - j > + \sum_{m=1}^{n-j} (H^{(m)} - E^{(m)})|n - j - m > = 0 \qquad (5\,;\,n-j)$$

. . . .

$$(H^{(0)} - E^{(0)})|n - 1 > + \sum_{m=1}^{n-1} (H^{(m)} - E^{(m)})|n - 1 - m > = 0 \qquad (5\,;\,n-1)$$

$$(H^{(0)} - E^{(0)})|n > + \sum_{m=1}^{n-1} (H^{(m)} - E^{(m)})|n - m > + (H^{(n)} - E^{(n)})|0 > = 0. \qquad (5\,;\,n)$$

Habituellement [2, 3], on multiplie scalairement les deux membres de (5 ; n) par le *bra* $< 0|$, soit

$$< 0|H^{(1)} - E^{(1)}|n - 1 > + \ldots + < 0|H^{(n-1)} - E^{(n-1)}|1 > + < 0|H^{(n)} - E^{(n)}|0 > = 0. \qquad (6)$$

On adopte ensuite la convention de normalisation

$$< 0|\psi > = < 0|0 > = 1$$

d'où l'on déduit les conditions d'orthogonalité

$$< 0|j > = 0 \quad \text{quel que soit} \quad j > 0. \qquad (7)$$

Dans ces conditions, on tire de (6)

$$E^{(n)} = < 0|H^{(1)}|n-1> + < 0|H^{(2)}|n-2> + \ldots + < 0|H^{(n)}|0>. \quad (8)$$

On obtient ainsi le résultat bien connu que $E^{(n)}$ ne dépend que des fonctions perturbées jusqu'à l'ordre $n-1$ seulement. *Nous allons montrer qu'il est possible d'exprimer $E^{(n)}$ à l'aide des fonctions perturbées jusqu'à l'ordre $n/2$ si n est pair, à l'ordre $(n-1)/2$ si n est impair.*

Montrons d'abord que l'on peut calculer $E^{(n)}$ à l'aide des fonctions jusqu'à l'ordre $n-2$. Multiplions scalairement l'équation conjuguée de (5 ; 1) par $|n-1>$, il vient

$$< 1|H^{(0)} - E^{(0)}|n-1> + < 0|H^{(1)} - E^{(1)}|n-1> = 0. \quad (9)$$

Éliminons l'élément matriciel

$$< 1|H^{(0)} - E^{(0)}|n-1>$$

entre (6) et (9), nous obtenons

$$-< 1|H^{(0)} - E^{(0)}|n-1> + \sum_{m=2}^{n} < 0|H^{(m)} - E^{(m)}|n-m> = 0. \quad (10)$$

Multiplions maintenant scalairement (5 ; $n-1$) par le *bra* $< 1|$, soit

$$< 1|H^{(0)} - E^{(0)}|n-1> + \sum_{m=1}^{n-1} < 1|H^{(m)} - E^{(m)}|n-1-m> = 0. \quad (11)$$

En éliminant encore le premier terme entre (10) et (11), on obtient

$$\sum_{m=1}^{n-1} < 1|H^{(m)} - E^{(m)}|n-1-m> + \sum_{m=0}^{n} < 0|H^{(m)} - E^{(m)}|n-m> = 0 \quad (12)$$

d'où l'on tire facilement

$$E^{(n)} = \sum_{m=1}^{n-1} < 1|H^{(m)} - E^{(m)})|n-1-m> + \sum_{m=2}^{n-1} < 0|H^{(m)} - E^{(m)}|n-m> + < 0|H^{(n)}|0> \quad (13)$$

c'est-à-dire que $E^{(n)}$ ne dépend plus que des fonctions perturbées jusqu'à l'ordre $n-2$ (pour $n > 2$).

L'expression (12) ne contient plus que les fonctions perturbées jusqu'à l'ordre $n-2$ et fournit ${}_{(n-2)}E^{(n)}$ si, de manière générale, nous convenons de désigner par ${}_{(n-j)}E^{(n)}$ l'énergie $E^{(n)}$ exprimée à l'aide des fonctions perturbées jusqu'à l'ordre $n-j$ seulement. Nous allons montrer que l'on a une relation générale de la forme

$$\sum_{k=0}^{j-1} \sum_{m=j-k}^{n-k} < k|H^{(m)} - E^{(m)}|n-k-m> = 0 \quad (14 ; j)$$

qui ne contient plus que les fonctions jusqu'à l'ordre $n-j$ et fournira donc l'expression ${}_{(n-j)}E^{(n)}$. Remarquons que (6) est un cas particulier de (14 ; j) pour $j = 1$, de même que (12) pour $j = 2$.

Raisonnons par récurrence et montrons que l'on passe bien de (14 ; j) à (14 ; $j+1$) en changeant j en $j+1$ dans (14 ; j). Cette relation peut encore être écrite

$$\sum_{k=0}^{j-1} < k|H^{(j-k)} - E^{(j-k)}|n-j> + \sum_{k=0}^{j-1} \sum_{m=j-k+1}^{n-k} < k|H^{(m)} - E^{(m)}|n-k-m> = 0. \quad (14 ; j)$$

En multipliant scalairement l'équation conjuguée de (5 ; j) par le *ket*$|n-j>$, nous obtenons

$$\sum_{k=0}^{j-1} < k|H^{(j-k)} - E^{(j-k)}|n-j> + < j|H^{(0)} - E^{(0)}|n-j> = 0. \quad (15)$$

En multipliant scalairement l'équation (5 ; $n-j$) par le *bra* $< j|$, il vient

$$< j|H^{(0)} - E^{(0)}|n-j> + \sum_{m=1}^{n-j} < j|H^{(m)} - E^{(m)}|n-j-m> = 0. \quad (16)$$

En ajoutant (14' ; j) et (16) puis en retranchant (15), nous obtenons finalement

$$\sum_{m=1}^{n-j} < j|H^{(m)} - E^{(m)}|n-j-m> + \sum_{k=0}^{j-1} \sum_{m=j-k+1}^{n-k} < k|H^{(m)} - E^{(m)}|n-k-m> = 0 \quad (14' ; j+1)$$

ou encore

$$\sum_{k=0}^{j} \sum_{m=j-k+1}^{n-k} < k|H^{(m)} - E^{(m)}|n-k-m> = 0 \quad (14 ; j+1)$$

qui est bien la formule obtenue à partir de (14 ; j) par la transformation $j \to j+1$; elle ne contient plus que les fonctions d'ordre inférieur ou égal à $n-j-1$. Puisque la formule (14 ; j) est valable pour $j = 0, 1$, elle est par suite valable pour toute valeur de j compatible avec la valeur de n.

De (14 ; j), on déduit facilement la valeur

$${}_{(n-j)}E^{(n)} = \sum_{k=1}^{j-1} \sum_{m=j-k}^{n-k} < k|H^{(m)} - E^{(m)}|n-k-m> + \sum_{m=j}^{n-1} < 0|H^{(m)} - E^{(m)}|n-m> + < 0|H^{(n)}|0>. \quad (17)$$

Si l'on utilise les conditions (7), les termes en $E^{(m)}$ de la seconde somme sont tous nuls.

Nous pouvons continuer ainsi jusqu'à épui-

sement de toutes les paires d'équations (5 ; j) et (5 ; $n - j$). En remarquant que l'on élimine la fonction d'ordre $n - j + 1$ entre les équations (5 ; $j - 1$) et (5 ; $n - j + 1$) pour aboutir à l'expression ${}_{(j)}E^{(n)}$, nous voyons que nous devons avoir finalement

— *pour n pair* : $n - j_{\max.} + 1 = (n/2) + 1$ d'où $j_{\max.} = n/2$ et

$${}_{n/2)}E^{(n)} = \sum_{k=1}^{(n/2)-1} \sum_{m=(n/2)-k}^{n-k} < k|H^{(m)} - E^{(m)}|n - k - m >$$

$$+ \sum_{m=n/2}^{n-1} < 0|H^{(m)} - E^{(m)}|n - m > + < 0|H^{(n)}|0 > \tag{18-1}$$

— *pour n impair* : $n - j_{\max.} + 1 = \dfrac{n+1}{2}$

d'où $j_{\max.} = \dfrac{n+1}{2}$ et

$$\left(\tfrac{n-1}{2}\right)E^{(n)} = \sum_{k=1}^{\frac{n-1}{2}} \sum_{m=\frac{n+1}{2}-k}^{n-k} < k|H^{(m)} - E^{(m)}|n - k - m >$$

$$+ \sum_{m=\frac{n+1}{2}}^{n-1} < 0|H^{(m)} - E^{(m)}|n - m > + < 0|H^{(n)}|0 > \tag{18-2}$$

Dans la plupart des applications, on a seulement $H^{(1)} \neq 0$, $H^{(2)} \neq 0$ et $H^{(n)} = 0$ pour $n > 2$.

L'expression (17) devient alors (pour $n > 2$ et $j \geqslant 2$), compte tenu de (7)

$$\begin{aligned}{}_{(n-j)}E^{(n)} = {} & < j - 1|H^{(1)}|n - j > \\ & + < j - 1|H^{(2)}|n - j - 1 > \\ & + < j - 2|H^{(2)}|n - j > \\ & - \sum_{k=1}^{j-1} \sum_{m=j-k}^{n-k} E^{(m)} < k|n - k - m >,\end{aligned} \tag{19}$$

tandis que les expressions (18) deviennent :

— pour n pair

$$\begin{aligned}{}_{(n/2)}E^{(n)} = {} & < \frac{n}{2} - 1 \mid H^{(1)} \mid \frac{n}{2} > \\ & + < \frac{n}{2} - 1 \mid H^{(2)} \mid \frac{n}{2} - 1 > + < \frac{n}{2} - 2 \mid H^{(2)} \mid \frac{n}{2} > \\ & - \sum_{k=1}^{\frac{n}{2}-1} \sum_{m=\frac{n}{2}-k}^{n-k} E^{(m)} < k|n - k - m >\end{aligned} \tag{20-1}$$

— pour n impair

$$\begin{aligned}\left(\tfrac{n-1}{2}\right)E^{(n)} = {} & < \frac{n-1}{2} \left| H^{(1)} \right| \frac{n-1}{2} > \\ & + < \frac{n-1}{2} \left| H^{(2)} \right| \frac{n-3}{2} > \\ & + < \frac{n-3}{2} \left| H^{(2)} \right| \frac{n-1}{2} > \\ & - \sum_{k=1}^{\frac{n-1}{2}} \sum_{m=\frac{n+1}{2}-k}^{n-k} E^{(m)} < k|n - k - m >.\end{aligned} \tag{20-2}$$

Manuscrit reçu le 15 juillet 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Dalgarno (A.) et Stewart (A. L.), *Proc. Roy. Soc.*, 1956, A **238**, 269. Cf. également Morse (P. M.) et Feshbach (H.), Methods of theoretical Physics (McGraw-Hill C°), 1953, Tome II, p. 1120.

[2] Par exemple Kramers (H. A.), Quantum mechanics (North Holland Publ. C°), 1956, p. 188 sq.

[3] Messiah (A.), Mécanique quantique (Dunod), 1960, Tome II, p. 586 sq.

RÉALISATION ET ÉTUDE D'UNE CHAMBRE A FISSION A BISMUTH, DÉTECTEUR DE NEUTRONS DE GRANDE ÉNERGIE

Par L. KOWALSKI (*),
Laboratoire de Physique Nucléaire de la Faculté des Sciences, Orsay.

Résumé. — On a réalisé une chambre à fission multiplaque à bismuth, détecteur à seuil pour les neutrons de plus de 50 MeV. Cette chambre est utilisée comme moniteur du faisceau de neutrons de 143 MeV du synchrocyclotron d'Orsay.

Abstract. — We have constructed a multiplate bismuth fission chamber which constitutes a threshold detector for neutrons of more than 50 MeV. This chamber is used as a monitor of the neutron beam of the Orsay synchrocyclotron.

1. **Introduction.** — On sait que les noyaux de Bi bombardés par des particules de très grande énergie peuvent subir la fission [1, 2, 3]. Ce processus a été utilisé pour détecter des neutrons d'une énergie supérieure à 50 MeV [4, 5, 6, 7] à l'aide de chambres d'ionisation à impulsions comportant des électrodes recouvertes de bismuth.

Les fragments de fission émis par le bismuth sont beaucoup plus ionisants que les autres particules chargées présentes dans les faisceaux et on peut les détecter séparément en utilisant un discriminateur électronique.

L'avantage spécifique des chambres à fission à bismuth réside dans le fait que ce sont des détecteurs à seuil élevé qui peuvent être employés en présence d'un fond important de rayonnements ionisants.

Les chambres à fission sont en général utilisées comme moniteurs et placées dans le faisceau direct de neutrons ; elles ne sont sensibles qu'aux neutrons énergiques effectivement utilisés dans les expériences. Pour des intensités très différentes, les taux de comptage restent proportionnels aux flux de neutrons. C'est pourquoi nous avons réalisé une telle chambre qui est utilisée sur le faisceau de neutrons de 143 MeV du synchrocyclotron d'Orsay.

(*) Habituellement à l'École Polytechnique de Varsovie.

2. **Description de la chambre à fission.** — Pour construire une chambre à bismuth, on part des mêmes principes généraux que pour les chambres à fission à uranium couramment utilisées pour détecter les neutrons lents [8, 9, 10, 11]. Cependant, la faible section efficace de fission du Bi et le grand nombre de réactions en compétition augmentent les difficultés pratiques dans le domaine des grandes énergies. En effet, la section de fission σ_f du Bi est égale à 36 mb pour des neutrons de 120 MeV et atteint environ 50 mb à 150 MeV [12, 13]. Pour réaliser un détecteur suffisamment efficace, nous sommes donc obligés d'augmenter le nombre de plaques recouvertes de Bi. Cela augmente la capa-

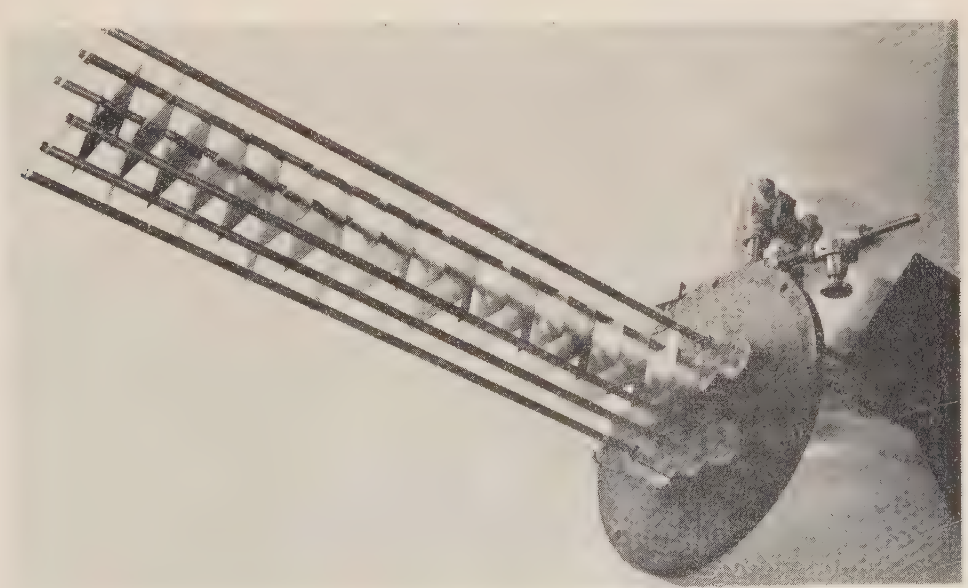


Fig. 1. — Vue de l'intérieur de la chambre à fission.

cité de la chambre, qui fonctionne sur le principe des chambres d'ionisation à impulsions, et le fond. Ce fond est le résultat de l'empilement des petites impulsions dues aux diverses particules chargées provenant des nombreuses réactions nucléaires dans les matériaux de la chambre et c'est pourquoi le fond dépend de l'intensité instantanée du faisceau et par conséquent de la structure en temps [21].

La figure 1 montre l'intérieur de la chambre.

Les électrodes en Al d'une épaisseur de 0,5 mm sont supportées par des tiges métalliques reliées à l'enceinte par l'intermédiaire d'isolateurs en plexiglass. L'enceinte en fer reliée à la masse joue le rôle d'anneau de garde.

Les électrodes portées à la haute tension (*fig.* 2) sont couvertes par des couches de bismuth. Le parcours moyen des fragments de fission dans Bi est égal à 4,3 mg/cm² [14] et nous avons choisi une épaisseur pour chaque couche de 0,64 mg/cm². Les

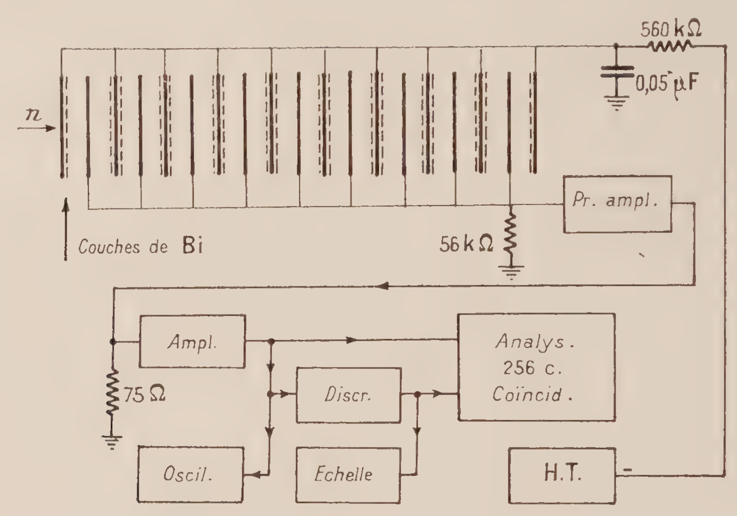


Fig. 2. — Schéma de la chambre et du montage électronique.

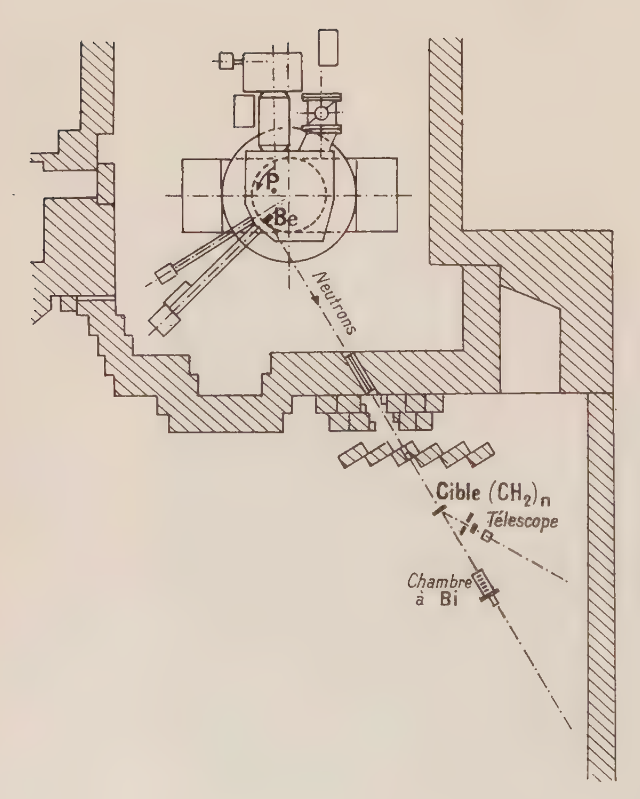


Fig. 3. — Disposition générale de l'expérience.

couches étaient préparées par évaporation de Bi sous vide et ces épaisseurs ont été mesurées à l'aide des rayons X [15]. La chambre est remplie par un mélange A + 2 % N_2 qui est relativement insensible aux petites impuretés [16]. Nous avons utilisé une pression d'une atmosphère pour avoir une bonne stabilité de fonctionnement.

En tenant compte des parcours des fragments de fission dans l'argon et des courbes de ralentissement [17], nous avons choisi une distance entre les électrodes de 1,5 cm. La chambre contient 0,61 g de Bi distribué sur une surface totale de 955 cm² (18 couches) et sa capacité est égale à 60 pF. Nous avons pris une surface utile pour chaque électrode (surface couverte de Bi) de 53 cm² de manière à couvrir entièrement le faisceau de neutrons du synchrocyclotron tel qu'il est défini par les différents canaliseurs. On obtient facilement des taux de comptage de l'ordre de 1 coup par seconde (le mouvement propre était négligeable). L'ensemble de l'appareillage électronique utilisé lors de cette étude est représenté schématiquement sur la figure 2.

Le temps de montée des impulsions est de 0,6 μs. Pour diminuer la possibilité d'empilement, on a utilisé une faible résistance de charge (56 kΩ) et une mise en forme dans le préamplificateur. Les impulsions à la sortie de ce dernier ont une forme symétrique et durent environ 2 μ sec.

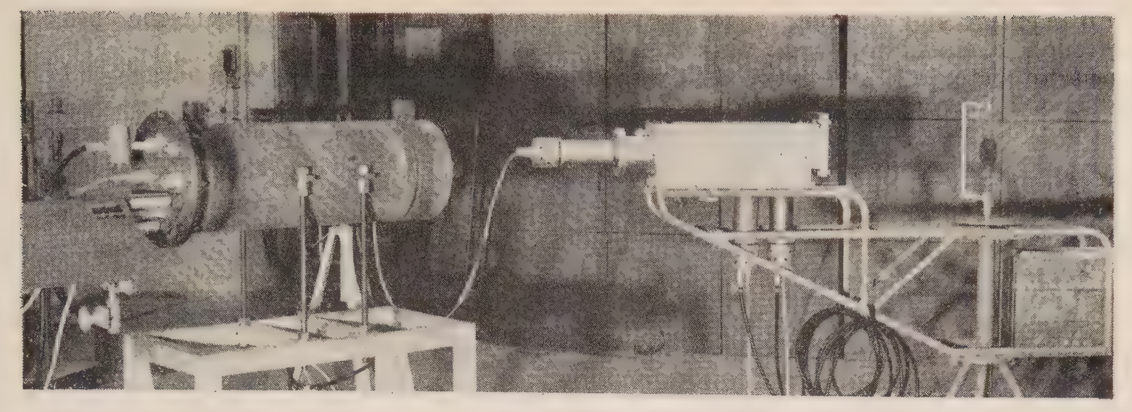


Fig. 4. — Chambre à fission et télescope utilisé lors des mesures.

Pour analyser le spectre d'impulsions, une porte linéaire, ouverte seulement par les impulsions dépassant un certain seuil, est utilisée avant l'analyseur à 256 canaux de manière à éviter sa surcharge. La chambre, lorsqu'elle est utilisée comme moniteur, fonctionne seulement avec un amplificateur et un discriminateur suivi d'une échelle.

Une petite source de particules α se trouve constamment à l'intérieur de la chambre ; elle peut être tournée vers les électrodes pour un contrôle permanent du fonctionnement de l'appareil.

3. **Étude du fonctionnement de la chambre à fission.** — La figure 3 représente la disposition générale utilisée.

Les protons accélérés dans le synchrocyclotron jusqu'à une énergie de 157 MeV tombent sur une cible de beryllium d'une épaisseur de 10 mm. Des neutrons énergiques sont projetés en avant à la suite d'une réaction d'échange (p, n) dans cette cible. Le spectre des neutrons possède un maximum vers 143 MeV [18].

Après être passés par un double canaliseur rectangulaire 30 × 50 mm² percé dans deux cylindres de fer de 50 cm de longueur chacun scellés dans des blocs de béton lourd du mur de protection, puis par une ouverture circulaire percée dans un bloc, les neutrons traversent une cible en polyéthylène et arrivent sur la chambre à fission. Pour l'étude de cette dernière, le télescope à scintillateurs réalisé par P. Radvanyi et J. Genin [19] a été utilisé comme moniteur du faisceau en comptant à 16° les protons de recul provenant de la cible de $(CH_2)_n$. La figure 4 montre la vue extérieure de la chambre à fission et du télescope.

Les flux de neutrons de plus de 20 MeV ont été déterminés à l'aide de la réaction $C^{12}(n\ 2n)C^{11}$ [20] qui a servi à étalonner la chambre.

Pendant ces mesures, le synchrocyclotron a été employé aussi bien dans des conditions normales (450 impulsions de faisceau par seconde) que dans le régime dit « stochastique », c'est-à-dire avec le programme auxiliaire d'accélération améliorant considérablement la structure en temps du faisceau [21].

4. **Caractéristiques de la chambre.** — La figure 5 représente le taux de comptage en fonction de la haute tension appliquée. La chambre est utilisée

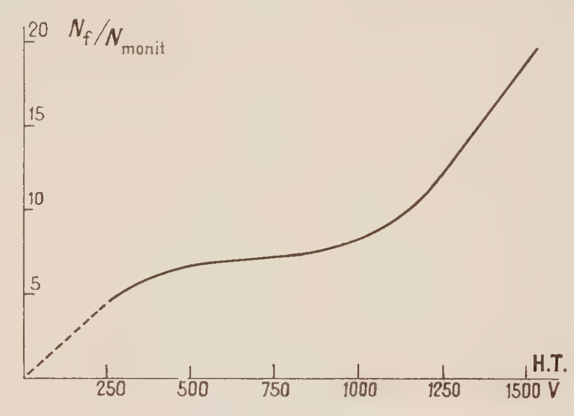


Fig. 5. — Nombre d'impulsions en fonction de la tension appliquée à la chambre.

couramment avec une tension de 800 V suffisante pour recueillir les charges produites dans le gaz par un fragment de fission (champ électrique de 530 V/cm). Une tension plus grande ne provoque pas une diminution appréciable du temps de montée des impulsions.

La figure 6 représente les spectres de hauteur d'impulsion provenant de la chambre à bismuth pour trois régimes de faisceau différents.

La chambre utilisée comme moniteur fonctionne seulement avec un amplificateur-discriminateur et une échelle (*fig.* 2). La caractéristique du seuil de discriminateur (courbe intégrale) est tracée sur la figure 6 en pointillé. Nous travaillons aux environs du point A sur la figure où l'influence des instabilités de l'électronique sur le taux de comptage est mini-

mum. En augmentant l'épaisseur de bismuth sur les électrodes, la chambre devient plus sensible, mais la partie plate de la caractéristique du seuil disparaît complètement, ce qui montre que la plus grande partie du fond visible est due aux réactions nucléaires provoquées dans le Bi.

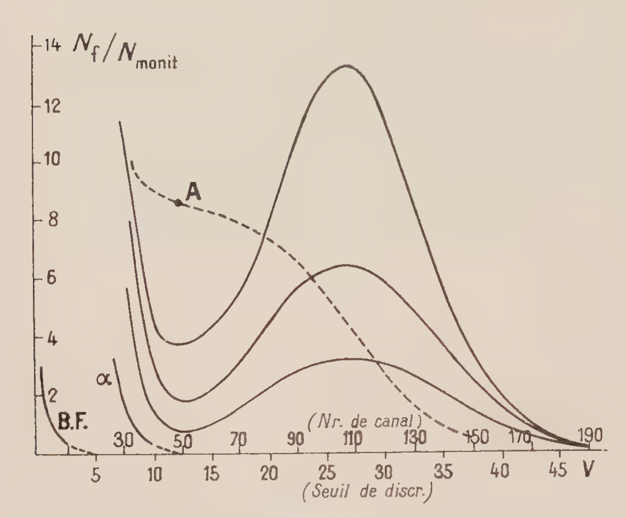


Fig. 6. — Spectres des hauteurs d'impulsion de la chambre à Bi pour différents régimes de faisceau. En pointillé, nombre d'impulsions en fonction du seuil du discriminateur.

L'épaisseur des couches de 0,64 mg/cm² est un compromis entre la stabilité du moniteur et sa sensibilité aux neutrons. La caractéristique du seuil montre qu'une instabilité de l'électronique de $\pm$ 5 % (gain de l'amplificateur et seuil du discriminateur) donne une variation du taux de comptage de $\pm$ 2 %. On peut facilement changer les plaques de Bi pour adapter la chambre à des exigences différentes.

Le rapport du taux de comptage de la chambre à Bi à celui du télescope servant de moniteur pour ces mesures reste constant dans le domaine de variation du flux de neutrons fourni par le synchrocyclotron.

Nous avons vérifié que la chambre est insensible aussi bien aux neutrons de 14 MeV qu'aux rayons γ du ^{60}Co.

Dans le cas des neutrons, la chambre a été placée à une distance d'environ 50 cm d'une cible de tritium bombardée par des neutons ($\sim 10^9$n/s.4π) ; dans le cas du cobalt, elle était irradiée par le faisceau de γ d'une source de 100 curies placée à une distance de 50 cm ($\sim$ 20 r/h).

Les caractéristiques de la chambre sont assez stables ; en particulier, il est possible de l'employer pendant plusieurs mois sans changer le gaz de remplissage. Pour faire le vide préalablement dans la chambre, il suffit d'utiliser une pompe à palettes. Aucune purification supplémentaire du gaz provenant de bouteilles commerciales n'est nécessaire pour cette utilisation de la chambre.

Je remercie M. Pierre Radvanyi qui a dirigé mon travail et qui m'a prodigué constamment son aide et ses conseils. Je remercie également Mme J. Blandin-Vial qui m'a familiarisé avec la technique de préparation et de mesure des couches minces, et M. Reide pour l'aide qu'il m'a apportée dans la partie électronique de ce travail.

Ma reconnaissance émue va au Pr F. Joliot qui a bien voulu m'accueillir dans son laboratoire. Je tiens à remercier M. le Pr Teillac pour l'intérêt qu'il a constamment apporté à cette étude, ainsi que les autorités françaises et polonaises qui m'ont apporté leur aide matérielle.

Manuscrit reçu le 21 juillet 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Perelman (I.), Goeckermann (R. H.), Templetson (D. N.) et Howland (J. J.), *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 352.
[2] Kelly (E. L.) et Wiegand (C.), *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 1135.
[3] Jungerman (J.) et Wright (S. C.), *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1112.
[4] Wiegand (C.), *Rev. Sc. Instr.*, 1948, **19**, 790.
[5] Juren (J. de), Rapp. U. C. R. L., 1951, 1090.
[6] Djelepov (W. P.), Golowin (B. M.) et Satavoff (W. I.), *Dokl. Akad. Naouk.*, S. S. S. R., 1954, **99**, 943 ; *Nuovo Cimento*, 1956, **3** (suppl. 1), 61.
[7] Hess (W. N.), Patterson (H. W.) et Wallace (R.), *Nucleonics*, 1957, **15**, Nr 3, 74.
[8] Abson (W.), Salmon (A. G.) et Pyran (S.), *Proc. Inst. Electr. Engrs*, 1958, **105** B, 349 et 365.
[9] Aves (R.), Barnes (D.) et MacKenzie, *J. Nuclear Energy*, 1955, **1**, 110.
[10] Holmes (J. E. R.), McVicar (D. D.), Shepherd (L. R. et Smith (R. D.), *J. Nuclear Energy*, 1955, **1**, 117.
[11] Hubert (P.), *Onde Electrique*, novembre 1955, p. 974.
[12] Goldanski (W. I.), Penkina (W. S.) et Tarunoff (E. Z.), *J. Eksp. Theor. Phys.*, S. S. S. R., 1955, **29**, 778.
[13] Jodra (L. G.) et Sugerman (N.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1470.
[14] Beasley (J. W.), Rapp. U. C. R. L., 1959, 8760. voir aussi Sugerman, Campos, Wielgoz, *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 388 (tabl. III).
[15] Mme Blandin-Vial (J.), à paraître.
[16] Focchini (U.) et Malvicini (A.), *Nucleonics*, 1955, **13**, avril, 36.
[17] Lassen (N .O.), 1re Conférence de l'O. N. U., Genève P/913, 1955, **2**, 243.
[18] Bergamaschi (C.), et al., *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 305.
[19] Radvanyi (P.) et Genin (J.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 322.
[20] Scharpe (J.) et Stafford (G. H.), *Proc. Phys. Soc.*, (A), 1951, **64**, 211.
[21] Cabrespine (A.), *C. R. Acad. Sc.*, **250**, 2544 et *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 332.

DIFFUSION DES NEUTRONS LENTS PAR L'HYDROGÈNE LIQUIDE

Par G. SARMA,
Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique, C. E. N., Saclay.

Résumé. — La section efficace différentielle de diffusion des neutrons lents est mise sous une forme simple qui fait intervenir d'une part un facteur de forme provenant des éléments de matrice de transition, d'autre part une transformée de Fourier d'une fonction de corrélation n'intéressant que les centres de masse des molécules et caractérisant la dynamique du liquide proprement dit. Il est montré que la partie qu'on peut appeler « cohérente » de la diffusion, c'est-à-dire celle qui est associée aux corrélations entre molécules différentes, est négligeable. La diffusion fait essentiellement intervenir la fonction d'autocorrélation. L'importance du recul est mise en évidence. On montre qu'un modèle de gaz parfait tenant compte du recul est raisonnable dans le cas général. Il conduit à des raies inélastiques bien séparées. Le cas de la diffusion élastique aux petits angles doit permettre la mesure d'un coefficient de self diffusion.

Abstract. — The differential slow neutron scattering cross section by liquid hydrogen is expressed, under some reasonable assumptions, as a product of two factors of simple physical meaning. The first factor, throughout spin correlations, involves transitions between molecular states and finally leads to a kind of an angular dependent scattering length, which is computed exactly for every transition in the rigid rotator approximation. One is then left with a second factor depending only on the translational motion of the molecules, which turns out to be a Fourier transform of the well-known pair correlation function for a monatomic liquid.

It is shown that what one might call the " coherent " part of the scattering, i.e. the part involving correlation between pairs of distinct molecules, is negligible.

So the scattering is mainly related to the so-called self correlation function. Recoil appears naturally as a prominent feature. It is shown that the scattering is generally well described by means of a perfect gas model, taking into account the recoil of the molecules. This model leads to well-separated peaks at a given angle. The small angle elastic scattering, where the perfect gas model is no longer valid, should allow for the measurement of a coefficient of self diffusion.

I. Introduction. — De nombreux auteurs [1] ont donné un traitement complet de la collision d'un neutron avec une molécule d'hydrogène. Tenant compte de tous les degrés de liberté de celle-ci (niveaux de rotation, de vibration, états de spin) ils ont calculé dans le système du centre de gravité les amplitudes des diverses transitions. En sommant sur l'angle de diffusion relatif, on pouvait aussi prévoir la section efficace totale associée à chaque transition.

Si on envoie un faisceau de neutrons lents non polarisés sur de l'hydrogène liquide, c'est en réalité à un phénomène collectif que l'on aura affaire, et qui sera affecté par le recul ainsi que par les forces intermoléculaires. Grâce à l'effet du recul, la diffusion due même aux transitions élastiques sera très généralement inélastique. La question se pose de savoir si l'on pourra voir des niveaux de rotation dans le liquide. Il faut regarder en particulier si la diffusion pourra donner pour diverses transitions des raies résolues. Nous nous proposons de répondre à ces questions en calculant la section efficace différentielle, c'est-à-dire la répartition angulaire et énergétique des neutrons diffusés dans le système du laboratoire. Nous utiliserons le formalisme développé par R. J. Glauber et A. C. Zemach [2] et L. Van Hove [3] pour le traitement dans l'approximation de Born de la diffusion par un système de particules.

L'amplitude de diffusion par un proton se met sous la forme [2, 4]

$$a = \frac{I + 1 + 2\,\bar{i}\bar{\sigma}}{2I + 1}\, a_+ + \frac{I - 2\,\bar{i}\bar{\sigma}}{2I + 1}\, a_-$$

où I, $\bar{i}$ désignent le spin du proton,

$\bar{\sigma}$ le spin du neutron,

a_+ et a_- les amplitudes de diffusion correspondant aux noyaux composés $I + 1/2$ et $I - 1/2$.

Nous appellerons par la suite Σ_c et Σ_i les carrés des amplitudes de diffusion « cohérente » et « incohérente ».

$$\Sigma_c = \left(\frac{I+1}{2I+1}\, a_+ + \frac{I}{2I+1}\, a_-\right)^2 = 3{,}57.10^{-2} \text{ barns}$$

$$\Sigma_i = \frac{I(I+1)}{(2I+1)^2}\,(a_+ - a_-)^2 = 1.586 \text{ barns.}$$

La coordonnée d'un proton sera mise sous la forme $\bar{r}_l + (-)^\alpha \dfrac{\bar{R}_l}{2}$ où $\bar{r}_l$ est la coordonnée du centre de masse de la molécule d'indice l, $\bar{R}_l$ la coordonnée relative des deux protons. α est un indice égal à 1 ou 2, l'indice l prend N valeurs.

Nous négligerons dans $\bar{R}$ le degré de liberté correspondant aux mouvements de vibration de la molécule. C'est l'approximation du rotateur rigide,

approximation suffisante pour notre propos, car dans l'hydrogène liquide les molécules sont du point de vue de la vibration à l'état fondamental ; d'autre part l'énergie minimum d'excitation du premier état de vibration, de l'ordre de 0,5 eV, est très supérieure à celle des neutrons lents que nous considérons.

La coordonnée relative $\bar{R}$ représentera donc l'orientation de la molécule, à laquelle est associé le nombre quantique J.

Il est raisonnable de faire les hypothèses suivantes sur le système diffuseur : 1) L'hamiltonien est indépendant des spins. 2) Il n'y a pas de corrélation entre la position et l'orientation d'une molécule. 3) Il n'y a pas de corrélation entre orientations de molécules différentes.

II. La fonction de corrélation.

— Sous ces conditions la fonction de corrélation $\Gamma(\bar{r}, t)$ caractéristique du système des N molécules se met sous la forme

$$\Gamma = 4(2\pi)^{-3}(2N)^{-1} \sum_{l,j=1}^{N} \int \overline{\mathrm{d}K} \exp - i\bar{K}\bar{r} < \exp - i\bar{K}\bar{r}_l(0) \exp i\bar{K}\bar{r}_j(t) >$$
$$\times \sum_{\alpha,\beta=1}^{2} < a_{l\alpha}(0) \exp - i(-)^{\alpha} \frac{\bar{K}\bar{R}_l(0)}{2} a_{j\beta}(t) \exp i(-)^{\beta} \frac{\bar{K}\bar{R}_j(t)}{2} >$$

où se trouvent séparées les corrélations entre molécules différentes dues à leur mouvement de translation, et les corrélations entre spins et orientations. La première moyenne

$$f_{lj} = < \exp - i\bar{K}\bar{r}_l(0) \exp i\bar{K}\bar{r}_j(t) >$$

est caractéristique de la dynamique du liquide proprement dit et exige pour celle-ci un modèle. Quant à la deuxième, qui s'écrit

$$g_{lj} = \sum_{\alpha,\beta=1}^{2} < a_{l\alpha}(0) \exp - i(-)^{\beta} \frac{\bar{K}\bar{R}_l(0)}{2} a_{j\beta}(t) \exp i(-)^{\beta} \frac{\bar{K}\bar{R}_j(t)}{2} >$$

le modèle que nous avons choisi pour la molécule et les hypothèses (1) et (2) suffisent à la calculer. Ce terme g fera apparaître les effets d'interférence dus à la présence de deux protons dans la molécule ainsi que les possibilités de transition. Cette deuxième moyenne doit porter sur les états internes des molécules caractérisés par les nombres quantiques associés aux $\bar{R}_j$, et sur le spin du neutron pour tenir compte de la non polarisation du faisceau incident.

La fonction de corrélation se met avec ces notations sous la forme

$$\Gamma(\bar{r}\, t) = 4(2\pi)^{-3}(2N)^{-1} \int \overline{\mathrm{d}K} \exp - i\bar{K}\bar{r} \left[\sum_{l \neq j} f_{lj}\, g_{lj} + \sum_{l} f_{ll}\, g_{ll} \right] = \Gamma_d + \Gamma_s$$

où nous avons séparé les contributions provenant de molécules différentes (Γ_d) et les contributions provenant des protons d'une même molécule (Γ_s). Γ_s joue le rôle d'une fonction d'autocorrélation d'une molécule.

III. La diffusion « cohérente ».

— Traitons d'abord de la contribution du terme Γ_d.

Le terme g_{lj}, pour $l \neq j$ s'écrit, compte tenu de l'absence de corrélation d'orientation ou de spin entre deux molécules différentes, comme un produit de deux moyennes indépendantes, soit

$$g_{lj} = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\sigma_z = 1/2 \\ \sigma_z = -1/2}} \left| \sum p_{n_0} < n_0 | a_1 \exp - i \frac{\bar{K}\bar{R}}{2} + a_2 \exp i \frac{\bar{K}\bar{R}}{2} | n_0 > \right|^2$$

σ_z est la projection sur Oz du spin du neutron. $|n_0>$ désigne un état d'une molécule, et p_{n_0} son poids statistique. a_1 et a_2 sont les amplitudes de diffusion des deux protons d'une molécule.

La quantité

$$A = a_1 \exp - i \frac{\bar{K}\bar{R}}{2} + a_2 \exp i \frac{\bar{K}\bar{R}}{2}$$

s'écrit

$$A = 2 \left(\frac{I+1}{2I+1} a_+ + \frac{I}{2I+1} a_- \right) \cos \frac{\bar{K}\bar{R}}{2} +$$
$$\frac{2}{2I+1} (a_+ - a_-) \left[\bar{S}\bar{\sigma} \cos \frac{\bar{K}\bar{R}}{2} + i\bar{\sigma}(\bar{i}_2 - \bar{i}_1) \sin \frac{\bar{K}\bar{R}}{2} \right]$$

où $\bar{S} = \bar{i}_1 + \bar{i}_2$ est le spin de la molécule.

L'état $|n_0>$ se met sous la forme $|JJ_z\, SS_z>$, J et J_z décrivant la rotation de la molécule.

Dans l'élément de matrice $< n_0|A|n_0 >$ la contribution de $\bar{\sigma}(\bar{i}_2 - \bar{i}_1)$ sera nulle, cet opérateur n'ayant d'élément de matrice non nul qu'entre états de symétrie différente, c'est-à-dire de spin différent. La contribution à la moyenne totale de $\bar{S}\bar{\sigma}$ sera aussi nulle, la trace des matrices de spin étant nulle. On obtient ainsi

$$g_{lj} = 4 \sum_c \frac{\sin^2 (Ka/2)}{(Ka/2)^2}$$

où $a = 0{,}75$ Å est la séparation des protons de la molécule d'hydrogène. On notera que g_{lj} ne dépend pas des poids statistiques des différents états pos-

sibles de la molécule d'hydrogène. La fonction Γ_d s'écrit donc

$$\Gamma_d = 4(2\pi)^{-3}(2N)^{-1} 4 \Sigma_c \int \overline{dK} \exp - i\bar{K}\bar{r} \frac{\sin^2(Ka/2)}{(Ka/2)^2}$$

$$\sum_{l \neq j} < \exp - i\bar{K}\bar{r}_l(0) \exp i\bar{K}\bar{r}_j(t) >_T.$$

Le sens physique de Γ_d apparaît ainsi clairement. Représentant la corrélation entre protons de molécules différentes, nous y trouvons.

a) Le facteur $\sum_{l\neq j} < \exp - i\bar{K}\bar{r}_l(0) \exp i\bar{K}\bar{r}_j(t) >_T$ qui correspond à la corrélation entre positions de deux molécules.

b) Le facteur d'interférence $\Sigma_c \frac{\sin^2(Ka/2)}{(Ka/2)^2}$ qui fait intervenir la section efficace « cohérente » et qui vient simplement du fait que les protons sont liés par paires.

Ces remarques suggèrent de définir la fonction de corrélation classique G_d associée aux mouvements des centres de masse des molécules.

$$G_d(\bar{r}, t) = (2\pi)^{-3} N^{-1}$$

$$\int \overline{dK} \exp - i\bar{K}\bar{r} \sum_{l\neq j} < \exp - i\bar{K}\bar{r}_l(0) \exp i\bar{K}\bar{r}_j(t) >_T. \tag{1}$$

La section efficace différentielle associée à Γ_d se met alors sous la forme

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, d\varepsilon} = 4N(2\pi)^{-1}\frac{k}{\hbar k_0} 4\Sigma_c \frac{\sin^2(Ka/2)}{(Ka/2)^2}$$

$$\int \exp i(\bar{K}\bar{r} - \omega t)\, G_d(\bar{r}, t)\, \overline{dr}\, dt. \tag{2}$$

La section efficace associée à Γ_d est donc celle qu'on aurait pour un liquide monoatomique où chaque atome aurait une amplitude de diffusion égale à $4a_{coh} \sin(Ka/2)/(Ka/2)$ où $a_{coh} = \sqrt{\Sigma_c}$ est l'amplitude de diffusion « cohérente » du proton. La petite valeur de a_{coh}, alliée au facteur géométrique $\sin(Ka/2)/(Ka/2)$, rend la section efficace de diffusion « cohérente » très faible.

IV. La contribution de Γ_s ou la diffusion « incohérente ». — Nous appellerons p_J le poids statistique des molécules dans l'état J. En fait dans l'hydrogène liquide n'existent pratiquement que les états $J = 0$ et $J = 1$ (para et ortho). L'énergie associée au niveau J est

$$E_J = \frac{\hbar^2 J(J+1)}{ma^2} = 0{,}015(1/2)\, J(J+1) \text{ eV}.$$

Le terme que nous avons appelé g_{ll}, qui représente les corrélations à l'intérieur de la molécule, se met aisément sous la forme

$$g_{ll} = \sum_J p_J \frac{1}{(2J+1)(2S+1)} \frac{1}{2} \sum_{\substack{\sigma_z = 1/2 \\ \sigma = -1/2}}$$

$$\sum_{J'} \exp i\frac{E_{J'} - E_J}{\hbar} t \sum_{\substack{S_z S'_z \\ J_z J'_z}} |< J'J'_z S'S'_z|A|JJ_z SS_z >|^2.$$

Rappelons que l'opérateur A se met sous la forme

$$A = \underline{2\left(\frac{I+1}{2I+1}a_+ + \frac{I}{2I+1}a_-\right)\cos\frac{\bar{K}\bar{R}}{2}} +$$

$$\underline{\frac{2}{2I+1}(a_+ - a_-)}\left[\underline{\bar{S}\bar{\sigma}\cos\frac{\bar{K}\bar{R}}{2}} + i\bar{\sigma}(\bar{i}_2 - \bar{i}_1)\sin\frac{\bar{K}\bar{R}}{2}\right].$$

Dans une transition conservant le spin de la molécule, seule la partie symétrique (soulignée) de l'opérateur donnera des éléments de matrice non nuls.

Dans une transition changeant le spin, seule la partie antisymétrique interviendra. Dans une telle transition en particulier n'apparaîtra que l'amplitude de diffusion « incohérente ».

Nous appellerons $g_{J\to J'}$ la quantité g_{ll} correspondant à une transition $J \to J'$. Le calcul montre qu'elle s'écrit suivant le cas, pour une transition conservant le spin :

$$g_{J\to J'} = \frac{p_J}{2J+1}\exp i\frac{E_{J'} - E_J}{\hbar} t [4\Sigma_c + 4/3\, S(S+1)\Sigma_i]$$

$$\sum_{J_z J'_z} |< J'J'_z|\cos\frac{\bar{K}\bar{R}}{2}|JJ_z >|^2.$$

Pour une transition changeant le spin :

$$g_{J\to J'} = \frac{p_J}{2J+1}\exp i\frac{E_{J'} - E_J}{\hbar} t \left[1 - \frac{S(S+1)}{3}\right] 4\Sigma_i$$

$$\sum_{J_z J'_z} |< J'J'_z|\sin\frac{\bar{K}\bar{R}}{2}|JJ_z >|^2.$$

Posons

$$_{J\to J'} = \exp i\frac{E_{J'} - E_J}{\hbar} t f_{J\to J'}(K).$$

Définissons d'autre part la fonction d'auto-corrélation des centres de masse, qui est une caractéristique de la dynamique du liquide,

$$G_s(\bar{r}, t) = (2\pi)^{-3}$$

$$\int \overline{dK} \exp - i\bar{K}\bar{r} < \exp - i\bar{K}\bar{r}_l(o) \exp i\bar{K}\bar{r}_l(t) >_T. \tag{3}$$

La section efficace différentielle associée à la transition $J \rightarrow J'$ se met alors aisément sous la forme

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, d\varepsilon} = 4N(2\pi)^{-1}\frac{k}{\hbar k_0} f_{J\rightarrow J'}(K)$$

$$\int \exp i\left[\bar{K}\bar{r} - \left(\omega - \frac{E_{J'} - E_J}{\hbar}\right)t\right] G_s(\bar{r}, t)\, \overline{d r}\, dt. \quad (4)$$

Ce résultat appelle deux remarques :

a) L'apparition dans la transformée de Fourier de $\omega - (E_{J'} - E_J)/\hbar$ comme argument du temps, au lieu de ω provient de ce qu'en plus des effets de la dynamique du liquide proprement dit intervient aussi dans le bilan énergétique l'énergie associée à la transition.

De façon plus précise appelons $\overline{V}_0$ la vitesse initiale de la molécule. Compte tenu de la conservation de l'impulsion, l'équation de conservation de l'énergie s'écrit

$$\hbar\omega = E_{J'} - E_J + \frac{(2m\overline{V}_0 - \hbar\overline{K})^2}{4m} - mV_0^2$$

ou

$$\hbar\omega - (E_{J'} - E_J) - \frac{\hbar^2 K^2}{4m} = -\hbar\overline{K}\,\overline{V}_0.$$

Le 2ᵉ nombre étant en moyenne nul, on peut écrire une équation moyenne de conservation de l'énergie

$$\hbar\omega - (E_{J'} - E_J) - \frac{\hbar^2 K^2}{4m} = 0 \quad (5)$$

qui détermine l'emplacement en énergie du pic diffusé. Cette équation tient compte comme on le voit de l'énergie de recul de la molécule qui ne peut jamais être négligée dans le cas de la molécule d'hydrogène. Le recul peut en effet être négligé (voir V), si $mT_0/MT \ll 1$ où m et T_0, M et T désignent respectivement la masse et la température du neutron et de l'atome diffuseur. Ce rapport, égal ici à $T_0/2T$ ($T = 20$ °K) est toujours $\geqslant 1$ pour des neutrons de température $\geqslant 20$ °K.

b) La quantité $f_{J\rightarrow J'}(K)$ qui joue le rôle du carré d'une amplitude de diffusion (dépendante de l'angle) est déterminée par la transition considérée.

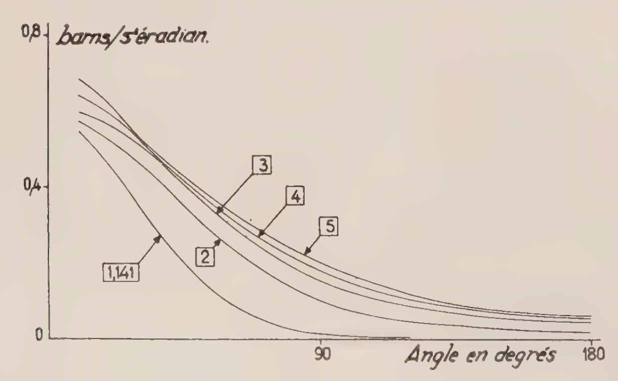


Fig. 1. — $d\sigma/d\Omega$ par molécule pour la transition $0 \rightarrow 0$ pour diverses longueurs d'onde initiales données en Å.

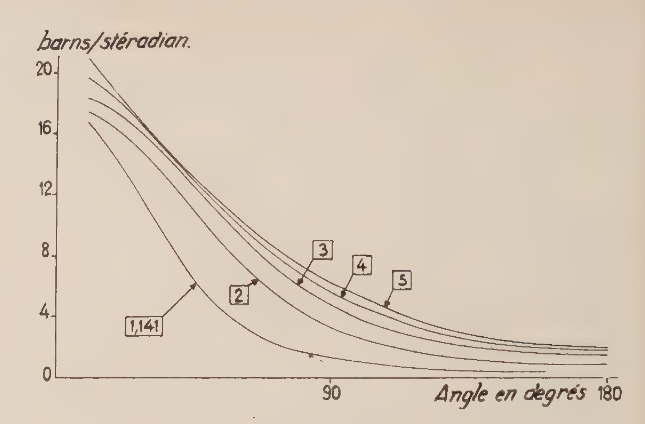


Fig. 2. — $d\sigma/d\Omega$ par molécule pour la transition $1 \rightarrow 1$ pour diverses longueurs d'onde initiales données en Å.

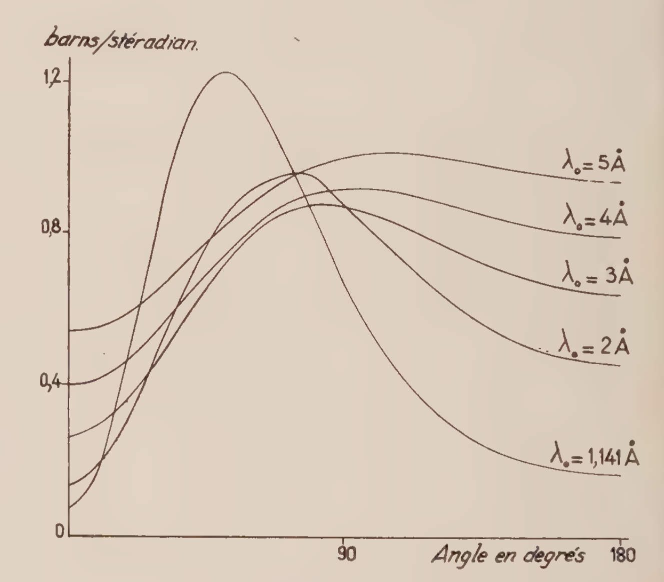


Fig. 3. — $d\sigma/d\Omega$ par molécule pour la transition $1 \rightarrow 0$.

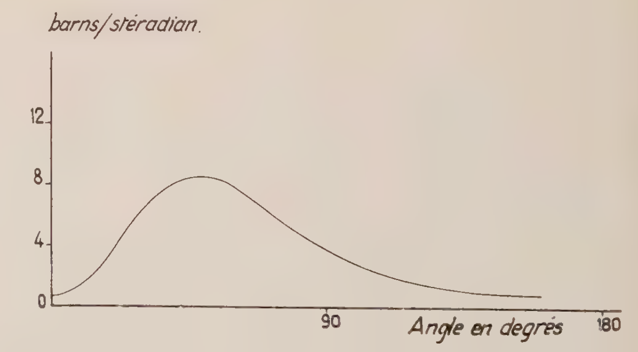


Fig. 4. — $d\sigma/d\Omega$ par molécule pour la transition $0 \rightarrow 1$. $\lambda_0 = 1{,}141$ Å.

Son ordre de grandeur varie fortement d'une transition à l'autre.

Voici son expression pour quelques transitions,

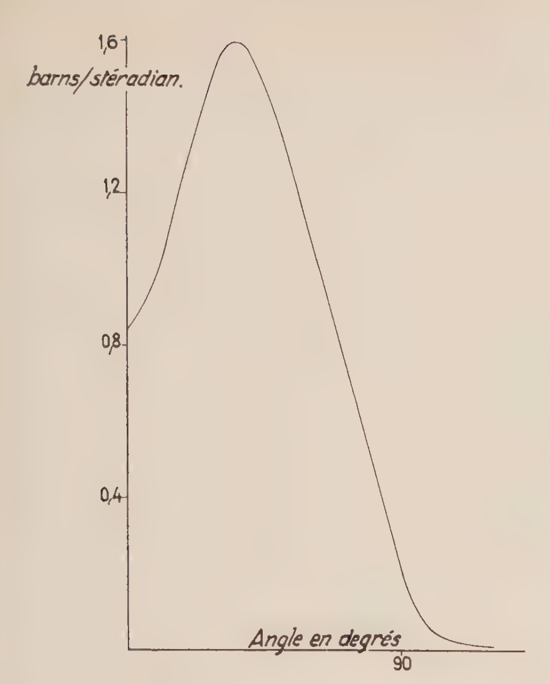


FIG. 5. — $d\sigma/d\Omega$ par molécule pour la transition $1 \to 2$. $\lambda_0 = 1{,}141$ Å.

les seules possibles avec des neutrons de longueur d'onde > 1 Å

$$f_{0\to 0} = 4p_0 \Sigma_c j_0^2$$
$$f_{1\to 1} = 4p_1[\Sigma_c + 2/3\, \Sigma_i]\, [j_0^2 + 2j_2^2]$$
$$f_{1\to 0} = 4p_1\, \Sigma_i/3\, j_1^2$$
$$f_{0\to 1} = 4p_0\, 3\Sigma_i\, j_1^2$$
$$f_{1\to 2} = 4p_1\, \Sigma_i/3\, (2j_1^2 + 3j_3^2).$$

Les j désignent les fonctions de Bessel sphériques prises pour la valeur $Ka/2$.

V. Expression de la section efficace dans un modèle de gaz parfait. — Revenons à la formule (4) qui donne la section efficace différentielle associée à une transition

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, d\varepsilon} = 4N(2\pi)^{-1}\frac{k}{\hbar k_0} f_{J\to J'}(K)$$
$$\int \exp i\left[\bar{K}\bar{r} - \left(\omega - \frac{E_{J'} - E_J}{\hbar}\right)t\right] G_s(\bar{r}, t)\, \overline{dr}\, dt.$$

Si on néglige l'effet des forces intermoléculaires, on peut prendre pour $G_s(\bar{r}, t)$ la fonction d'autocorrélation du gaz parfait

$$G_s(\bar{r}, t) = \left[\frac{2\pi\, t(k_B\, Tt - i\hbar)}{2m}\right]^{-3/2} \exp - \frac{2mr^2}{2t(k_B\, Tt - i\hbar)} \quad (6)$$

(cf. III).

L'approximation ainsi faite sera toujours très bonne aux temps courts, c'est-à-dire pour $\omega - \dfrac{E_{J'} - E_J}{\hbar}$ grand. L'équation (5) montre que grâce au recul il en est toujours ainsi sauf dans le cas des transitions élastiques aux petits angles. Nous reviendrons sur ce cas particulier. On ne peut dans l'expression (6) négliger $\hbar$ sous peine de négliger le recul (cf. V). On obtient avec ce modèle la formule de section efficace suivante par molécule

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, d\varepsilon} = 4\left(\frac{m}{\pi\, k_B\, T}\right)^{1/2} \frac{k}{\hbar k_0} \frac{f_{J\to J'}(K)}{K}$$
$$\exp - m\, \frac{\left[\hbar\omega - (E_{J'} - E_J) - \dfrac{\hbar^2 K^2}{4m}\right]^2}{k_B\, T\, \hbar^2 K^2}. \quad (7)$$

Où l'on voit apparaître comme prévu la conservation de l'énergie.

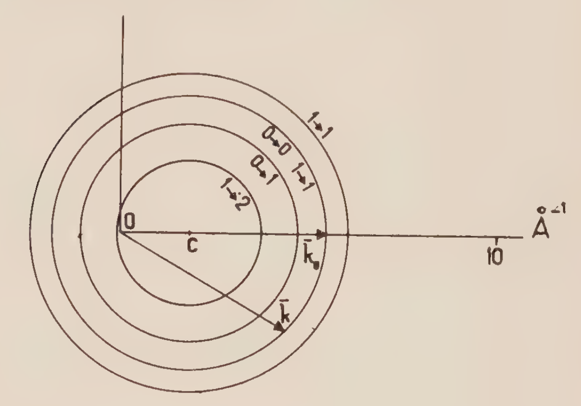


FIG. 6. — Surface de diffusion associées aux diverses transitions pour une longueur d'onde initiale $\lambda_0 = 1{,}141$ Å.

Valeurs de la longueur	$1 \to 0$		$\lambda_\gamma = 1{,}65$ Å
d'onde finale λ_γ	$0 \to 0$,	$1 \to 1$	$\lambda_\gamma = 2{,}12$ Å
pour l'angle $\theta = \pi/2$	$0 \to 1$		$\lambda_\gamma = 2{,}86$ Å

VI. Les surfaces de diffusion associées aux transitions. — L'équation (5) de conservation de l'énergie, qui donne l'emplacement de la raie diffusée, s'écrit

$$\hbar^2 \frac{k_0^2 - k^2}{2m} - (E_{J'} - E_J) - \frac{\hbar^2 K^2}{4m} = 0$$

où $\bar{K} = \bar{k} - \bar{k}_0$, $\bar{k}_0$ et $\bar{k}$ vecteurs d'onde du neutron incident et diffusé. Dans l'espace des $\bar{k}$, le lieu des extrémités des vecteurs $\bar{k}$ est donc une sphère. Le centre de ces sphères est le point C (voir figure) défini par $\overline{OC} = \bar{k}_0/3$ (O origine des vecteurs). Le rayon de la sphère correspondant à la transition $J \to J'$ est

$$R = 2/3\, k_0 \left[1 - \frac{3/2(E_{J'} - E_J)}{E_0}\right]^{1/2}$$

en appelant E_0 l'énergie du neutron incident.

La sphère Σ de rayon $2/3\, k_0$ correspond aux transitions élastiques ; Σ_1 et Σ_2 représentent des transitions où la molécule est excitée à un niveau

supérieur. Σ_3 représente une transition où la molécule se désexcite. Dans les deux premiers cas le neutron perd toujours de l'énergie. Dans le troisième cas il n'en gagne pas toujours.

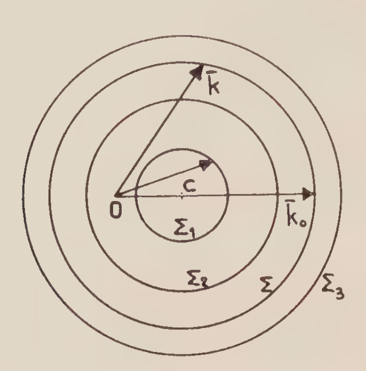


Fig. 7.

A un angle donné les raies correspondant aux diverses transitions seront nettement séparées en énergie si leur largeur est faible vis-à-vis de leur espacement. Il faut faire exception pour les raies élastiques $1 \to 1$ et $0 \to 0$ qui seront toujours confondues.

VII. **Largeur des raies.** — Avec les hypothèses que nous avons faites, la largeur de la raie diffusée provient uniquement de l'agitation thermique des molécules.

Dans l'expression (7) de la section efficace, la largeur est essentiellement imputable à l'exponentielle, qui s'écrit

$$\exp - \frac{9}{8}\frac{E_0}{k_B T}\frac{[(\bar{k} - \bar{k}_0/3)^2 - R^2]^2}{K^2 k_0^2}$$

où R est le rayon de la sphère de diffusion, et E_0 l'énergie du neutron incident.

Dans tous les cas la largeur est minimum aux petits angles. On se rend compte qu'elle a pour expression quand elle est faible

$$\mathrm{d}k \sim \left(\frac{k_B T}{E_0}\right)^{1/2} \frac{K k_0}{3k - k_0}.$$

La largeur en énergie correspondante est

$$\delta E \sim \frac{2}{9} E_0 \left(\frac{k_B T}{E_0 - 3/2\, \Delta E}\right)^{1/2} |(\alpha - 1)(1 + 2\alpha)|$$

où nous avons posé

$$\Delta E = E_{J'} - E_J \qquad \alpha = \left(1 - \frac{3/2\, \Delta E}{E_0}\right)^{1/2}.$$

Il est facile de voir que cette largeur en énergie décroît dans tous les cas quand l'énergie incidente E_0 croît. Ainsi pour $E_0 = 720$ °K on trouve respectivement pour les transitions $0 \to 1$ et $1 \to 0$ des largeurs de l'ordre de 20 et 13 °K. Pour une énergie incidente de 20 °K et la transition $1 \to 0$ on trouve une largeur de 30 °K, l'énergie finale étant alors de l'ordre de 180 °K.

La largeur pour les transitions inélastiques varie donc peu autour de 20 °K. Le gain ou la perte d'énergie dû aux transitions étant beaucoup plus grand, les raies sont en général bien séparées. Leur largeur est cependant trop forte pour pouvoir espérer voir la largeur propre des niveaux de rotation dans le liquide.

Cas particulier des transitions élastiques aux petits angles. — Comme nous l'avons remarqué plus haut, le modèle de gaz parfait est incorrect pour expliquer la diffusion élastique aux petits angles. Si l'angle est suffisamment petit, l'échelle des temps est grande et la fonction d'autocorrélation peut être déduite d'un modèle de self diffusion. La condition à laquelle on est conduit pour l'angle est en fait $Kd \ll \pi$ (cf. V), qui s'écrit encore

$$\lambda_0 \gg \theta d$$

où λ_0 est la longueur d'onde initiale, θ l'angle et d une distance intermoléculaire moyenne. Avec des neutrons de l'ordre de 5 Å et des angles inférieurs à 10° il doit donc être facile de mesurer le coefficient de self diffusion de l'hydrogène.

VIII. **Remerciements.** — L'auteur tient à remercier MM. A. Herpin et P. G. de Gennes pour de fructueuses discussions sur ce travail.

Manuscrit reçu le 23 juin 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Schwinger (J.) et Teller (E.), *Phys. Rev.*, 1937, **52**, 286. Brimberg (S.), 2nd U. N. Conference on the peaceful uses of Atomic Energy, A/Conf.15/P/154.

[2] Zemach (A. C.) et Glauber (R. J.), *Phys. Rev.* 1951, **101**, 118 et 129.

[3] Van Hove (L.), *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 249.

[4] Cassels (J. H.), Progress in nuclear Physics I, Butterworth-Springer, London, 1950.

[5] de Gennes (P. G.), Communication privée. *Physica*, 1959, **25**, 825.

SOUS-STRUCTURES DANS LES CRISTAUX DE BROMURE D'ARGENT

Par HENRI CHATEAU et ANNE DE CUGNAC,
Laboratoires de Recherches de la Société Kodak Pathé (1).

Résumé. — On a étudié par diffraction de rayons X monochromatiques des monocristaux de bromure d'argent de forme très régulière.

D'après les diagrammes, chaque cristal est constitué par un réseau régulier au sein duquel existent de très nombreux petits cristallites orientés par rapport aux axes [110] du cristal de base. Les angles de rotation des cristallites autour de ces axes sont généralement inférieurs à 10°, mais peuvent atteindre 26°.

Les sous-structures se forment à l'obscurité pendant la croissance des cristaux ou encore, sous l'action de la lumière pendant le noircissement direct.

Abstract. — Several monocrystals of silver bromide were analyzed by monochromatic X-ray diffraction. The shape of these crystals is very regular, nevertheless the diffraction patterns show the presence of a great number of substructures in every crystal.

According to the patterns, each crystal is constituted by a regular lattice in which there are small crystallites. These crystallites are oriented around the 110 axis of the perfect crystal and the angles of rotation are generally less than 10°, but in some cases, they reach 26°.

The substructures appear in darkness during the growth of crystals or, also, whilst the light causes blackening of crystals.

La diffraction de rayons X effectuée sur de nombreux monocristaux de BrAg préparés par voie humide a donné des diagrammes de Laue d'aspect inattendu. A côté des taches normales présentant un astérisme considérable, on observe des taches propres à une structure fibreuse. Celles-ci révélant l'existence probable de sous-structures ou cristallites, nous avons approfondi l'étude de ces cristaux.

Les cristaux ont été obtenus à partir de diverses solutions de BrAg dans des solvants appropriés :

1° BrAg est dissous dans l'ammoniaque concentré bouillant. Lorsque la solution est saturée on transvase dans un bécher maintenu à 20 °C. Il se forme en quelques minutes des cristaux de BrAg. Ceux formés à la surface du liquide sont plus gros et plus homogènes en taille que ceux formés au sein de la solution.

2° De l'acide bromhydrique est saturé en BrAg à 70 °C. Par refroidissement de gros cristaux se déposent.

3° On porte à 70 °C de la diméthylformamide préalablement saturée à 25 ° en BrK. On ajoute un excès de BrAg. Après filtration, la solution refroidie à 25° donne de beaux cristaux.

Ces trois techniques permettent l'obtention de cristaux tabulaires dont la taille est généralement comprise entre 100 et 700 μ. L'épaisseur peut atteindre 20 μ, mais elle est souvent de l'ordre de 5 μ.

Le contour des faces à grand développement est presque toujours très simple : hexagone régulier ou semi-régulier, triangle équilatéral.

(1) Communication n° 2079 V.

Technique d'analyse aux rayons X. — Le cristal est fixé sur un support mince d'acétate de cellulose par une bande collante ou par une goutte d'une solution de gélatine ou de graisse de silicone. Il est ensuite orienté de telle façon que les faces de grand développement soient perpendiculaires au faisceau de rayons X, la position des axes cristallins étant repérée.

Le générateur est un « Dictyobloc » à tube scellé. L'anticathode est en cuivre et le rayonnement émis, bien que filtré par du nickel, possède un résidu polychromatique. La tension d'alimentation est de 45 kV et le débit de 6 mA.

La divergence des rayons X est réduite à 1° par une double collimation.

Dans ces conditions, le temps d'exposition varie de 2 à 12 heures pour obtenir les taches de diffraction de texture.

Repérage des axes. — Pour repérer les axes cristallographiques, on a appliqué la technique du cristal tournant. Dans tous les cas, on a vérifié que les indices sont bien ceux supposés en admettant que les faces de grand développement du cristal correspondent à des plans { 111 }.

La photographie reproduite figure 1, correspond au diagramme d'un cristal de BrAg de 300 μ tournant autour d'un axe [110]. On remarquera que les taches de diffraction sont allongées suivant l'arc Debye-Scherrer passant par ce point. Nous verrons l'importance de cette observation.

Aspect des diagrammes de diffraction. — L'exemple type représenté figure 2 a été obtenu

avec un cristal de 250 μ (*fig.* 3). Les taches de diffraction présentent une symétrie ternaire ou sénaire. Elles sont situées sur des cercles concentriques qui correspondent aux anneaux Debye-Scherrer d'une poudre de BrAg.

Des taches présentant la même symétrie apparaissent quelquefois entre les anneaux 200 et 220 du BrAg. Ces taches sont dues à de l'argent provenant d'une photolyse et correspondent à la diffraction sur les plans { 111 }.

Lorsque l'axe vertical du cristal est un axe [211], le diagramme a l'aspect de la figure 2. L'axe vertical du diagramme traverse une tache sur chacun des anneaux 400, 222 ou 200.

La grandeur et la forme des taches de diffraction varient légèrement d'un cristal à l'autre. Les taches sont parfois ponctuelles mais généralement elles forment un arc sur l'anneau Debye-Scherrer correspondant, l'angle de cet arc étant toujours inférieur à 10° et le plus souvent de l'ordre de 2 à 4°. Lorsqu'une tache constitue un arc de 4 à 10°, on peut souvent la décomposer en plusieurs points d'intensités relatives différentes (*fig.* 4), ce qui est l'indice de la présence de sous-structures dans le cristal.

Les plus gros cristaux (> 400 μ) donnent souvent des taches de Laue avec astérisme (*fig.* 5). Leur allongement considérable est propre à des cristaux imparfaits.

Interprétation des diagrammes de rayons X. — Pour un cristal parfait en position fixe dans un faisceau de rayons X monochromatiques, l'orientation satisfaisant à la relation de Bragg n'est réalisée qu'accidentellement.

Les cristaux analysés ayant toujours un axe [111] parallèle aux rayons X, le calcul montre qu'il est impossible avec un cristal parfait d'obtenir des taches de diffraction sauf, peut-être pour le plan (400) (la divergence des rayons X étant de 1° et l'orientation des cristaux tabulaires ne pouvant être réalisée à mieux de 1 à 2° près).

Pour interpréter les diagrammes de diffraction, il faut admettre que le cristal présente des zones de désorientation pour lesquelles les plans cristallins ont subi des déviations angulaires.

Nous avons vérifié que les rayons X sont incapables de produire le type de désorganisation observé, même après plusieurs dizaines d'heures d'exposition sur le diffractomètre. Cette observation est en accord avec les résultats de R. H. Herz [1] et de C. R. Berry [2-3].

Le petit nombre de taches observées et leur symétrie indiquent que les désorientations ne sont pas quelconques.

Les diagrammes obtenus sont semblables aux diagrammes de textures métalliques. Ceci suggère qu'un axe donné et commun à toutes les zones désorientées garde sa direction initiale.

Hypothèses d'axes de fibre [110]. Calcul du nombre et de la position des taches de diffraction. — Chaque désorientation peut être considérée comme une partie du cristal initial parfait ayant subi une rotation autour d'un axe (analogue à un axe de fibre). On peut rechercher l'indice des divers axes de rotation possibles en considérant les angles que font les droites passant par les taches et le centre du diagramme avec l'axe vertical du film. Cette méthode d'analyse est classique dans l'interprétation d'un diagramme de texture. Mais si, d'une manière générale, il n'y a qu'un ou deux axes de fibre, dans le cas des cristaux de BrAg on peut prévoir plusieurs « axes de fibre ».

Soit δ l'angle que fait la droite joignant une tache au centre du diagramme et la verticale du film. M. Polanyi a montré (4) que

$$\cos \delta = \cos \rho / \cos \theta$$

où ρ est l'angle que fait le plan cristallin de la tache considérée avec l'axe de fibre et θ l'angle de Bragg.

Si le cristal est orienté de telle façon qu'un axe [211] soit vertical, on obtient le diagramme schématisé figure 6. Une tache de chacun des

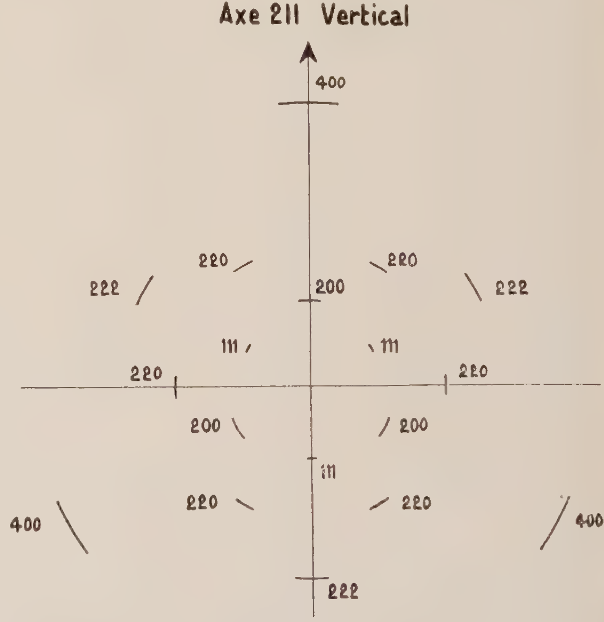


Fig. 6. — Schéma de diagramme plan de diffraction de rayons X d'un monocristal de BrAg.

plans (400), (200) et (222) est située sur la verticale. Il n'y a que deux valeurs expérimentales de δ : 0 et 60° pour les plans cités, 30 et 90° pour le plan (220).

Le fait d'obtenir $\delta = 0$ pour des plans d'indices différents indique qu'il y a plus d'un axe de fibre et probablement trois en raison de la symétrie de toutes les taches.



Fig. 1. — Cliché de diffraction d'un cristal de BrAg tournant autour d'un axe [110].

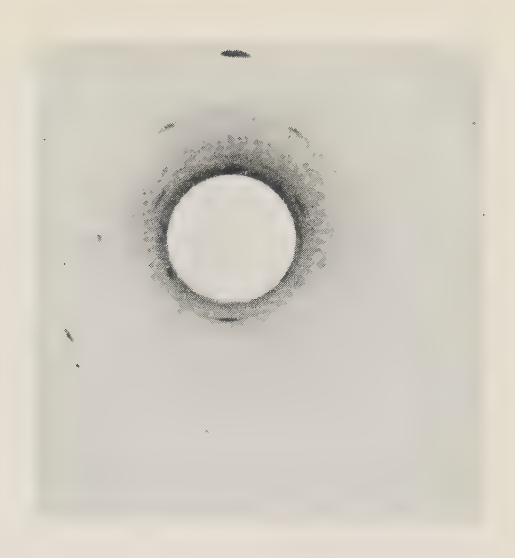


Fig. 2. — Diagramme de diffraction d'un monocristal de BrAg.

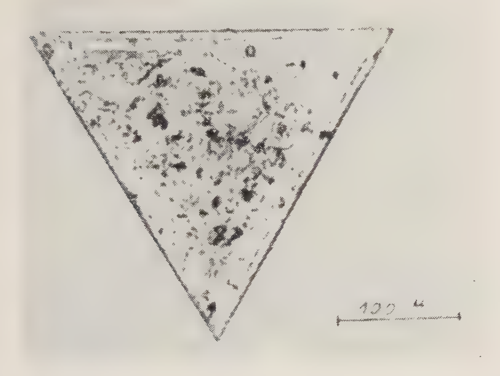


Fig. 3. — Monocristal de BrAg.



Fig. 4. — Agrandissement d'une tache de diffraction de BrAg.



Fig. 5. — Cliché de diffraction montrant des taches de Laue avec astérisme.

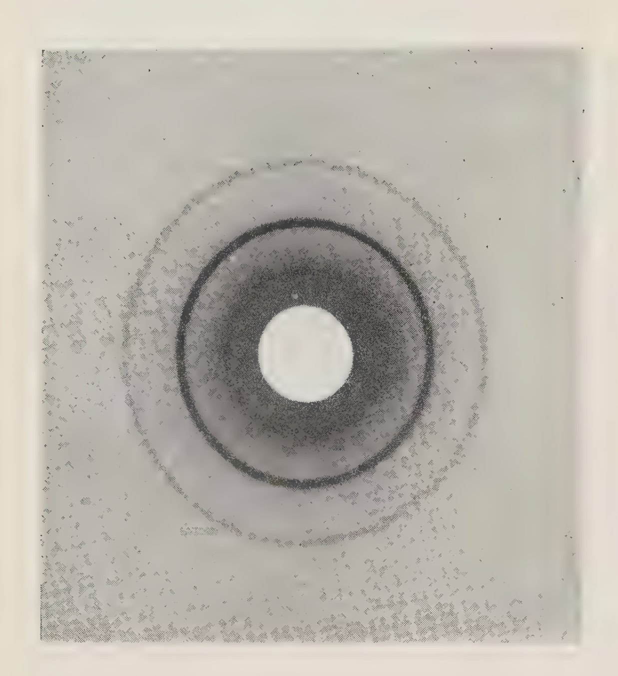


Fig. 7. — Diagramme de poudre du BrAg.



Fig. 8. — Cristal ayant subi une corrosion prolongée.



Fig. 9. — Diffraction d'un cristal peu déformé avant exposition à la lumière.



Fig. 10. — Diffraction du cristal de la figure 9 exposé 4 heures à la lumière solaire.

D'autre part, les angles δ ont souvent les valeurs 30 ou 60°, à mieux de 1° près. Or, il existe trois axes [110] dans un plan (111) faisant deux à deux un angle de 60°. Il en est de même pour les axes [211]. En outre, l'angle entre un axe [110] et un axe [211] est égal à 30° ou 90°.

Ces remarques montrent la possibilité d'avoir trois axes de fibre ayant les mêmes indices : [110] ou [211], ces axes étant situés dans un même plan (111).

Avec des axes de fibres [211], chaque tache 200 conduit à une valeur ρ de 66° qui, reportée dans la formule de Polanyi, conduit à $\delta = 65°$. Comme l'angle expérimental est presque toujours égal à 60°, il y a incompatibilité. Cette conclusion est confirmée par la construction d'Ewald qui permet le calcul exact de δ.

Au contraire, si l'on admet que les axes de fibre sont les trois axes [110] situés dans le plan du cristal, on prévoit très exactement l'emplacement sur le cliché de toutes les taches observées.

Mais la théorie prévoit beaucoup plus de taches qu'il n'en est observé. Le problème est analogue lorsqu'on considère une tôle laminée, certaines taches manquant dans les diagrammes. Par analogie, on peut supposer que dans le BrAg les plans { 111 } parallèles aux faces de grand développement peuvent s'écarter de leur position normale pour créer une désorientation, mais très difficilement au delà d'un angle limite.

Connaissant les axes de fibres, il est possible de prévoir l'emplacement et le nombre des taches de diffraction en fonction de l'angle α de rotation.

Pour faciliter l'exposé, on suppose un axe de fibre [110] vertical. L'axe [111] perpendiculaire au cristal est confondu avec les rayons X. Le problème de la position théorique des taches est alors résolu graphiquement à l'aide de la construction d'Ewald. Pour les tracés, on utilise les données suivantes :

constante du réseau : 5,775 Å

longueur d'onde $K\alpha$: 1,541 Å ($2/3\ K\alpha_1 + 1/3\ K\alpha_2$).

Soit γ l'angle de la projection d'un rayon diffracté sur le plan horizontal avec le rayon incident. On a déterminé γ à mieux de 1/2° près.

Connaissant γ et θ on peut calculer δ par la relation : $\operatorname{tg} \gamma = \operatorname{tg} 2\theta \sin \delta$. Il est possible de contrôler rapidement cette façon de procéder en calculant ρ, angle entre l'axe de fibre et la normale au plan étudié, par la relation : $\cos \rho = \cos \theta \cos \delta$.

La valeur obtenue doit coïncider avec une des valeurs possibles déterminés par la théorie.

Les résultats obtenus ont permis d'établir le tableau I qui considère uniquement les trois axes de fibres [110] situés dans le plan du cristal.

Les angles δ qui conduisent aux taches de diffraction observées sont en italique. On voit qu'à tous ces angles, il est possible d'adjoindre un angle de rotation α toujours inférieur ou égal à 26° (ces valeurs sont en italique). Lorsque α est plus grand, avec l'appareillage utilisé, il n'y a jamais de taches de diffraction visible.

TABLEAU I

Plan	γ	ρ théor.	ρ exp.	δ	α angle de rotation		
200	22°25′	45°	45°42′	45°	33°		78°
	31°	90°	90°	*90°*	*19°*		51°
220	39°10′	60°	60°35′	*57°19′*	*26°*	45°	82°
	55°	90°	90°	90°	32°		77°
222	29°30′	35°16′	35°25′	23°	18°		88°
	55°	90°	90°	*90°*	*8°*	48°	62°
400	50°	45°	45°11′	34°	7°		76°
	65°	90°	90°	*90°*	*3°*		67°
111	15°	35°16′	34°35′	33°14′	11°		59°
	26°30′	90°	83°	*90°*	6°	34°	77°
311	22°30′	31°30′	31°29′	18°	32°	37°	77°
	48°	65°50′	65°08′	*61°40′*	*6°*	45° 65°	77°
	52°30′	90°	89°	90°	17°	35°	86°

En résumé : *on prévoit les taches de diffraction observées en admettant que le cristal possède des zones désorientés d'un angle inférieur à 30° autour d'un axe* [110]. Le rôle des trois directions [110] non situées dans le plan du cristal n'apparaît pas dans les diagrammes. Ces sous-structures peuvent être constituées soit par des blocs mosaïque, soit par des portions de cristal déformées. Dans ce dernier cas, il y a continuité entre le cristal de base et les régions désorientées.

Les diagrammes de rayons X ne permettent pas de choisir entre ces deux représentations. *Pour simplifier cet exposé, on utilisera au cours de l'interprétation des résultats le terme « cristallites » pour désigner les régions désorienteés sans préjuger de leur nature.*

Les cristallites doivent être nombreux car les taches de diffraction sont relativement intenses. En outre, ils sont certainement assez petits pour que le cristal garde sa cohésion et sa forme régulière macroscopique.

Interprétation de l'intensité relative des taches de diffraction. — Comme toutes les désorientations ne participent pas à la réflexion sélective de Bragg et que la probabilité d'un angle de rotation élevé doit être plus petite que celle d'un angle faible, les taches pour lesquelles l'angle α est petit doivent avoir une intensité relativement plus grande. Mais il faut tenir compte de la géométrie de la diffraction et du facteur de structure des plans cristallins.

La figure 7 représente un diagramme Debye-

Scherrer d'une poudre de BrAg. Les intensités des anneaux décroissent quand le diamètre grandit.

Au contraire, avec les monocristaux les taches 400 sont intenses alors que les taches 220, par exemple, sont très faibles. Mais dans le tableau I, l'angle α est de 3° pour les taches 400 alors qu'il est de 26° pour les taches 220. Cette inversion des intensités s'explique donc aisément.

D'une façon générale, pour distinguer une tache sur le cliché, il est nécessaire d'avoir un angle α d'autant plus petit que l'anneau Debye-Scherrer donné par la poudre correspondante a une intensité plus faible.

Pour une durée d'exposition aux rayons X ne dépassant pas cinq heures, beaucoup de cristaux donnent des taches bien visibles. Ce fait est remarquable car seuls interviennent dans la diffraction les cristallites désorientés. Cependant, il faut noter que chaque tache de diffraction est formée par les rayons diffractés provenant de tous les cristallites pour lesquels la rotation a amené le plan considéré sous l'angle de Bragg. Il y a convergence au même point, au contraire d'un diagramme de poudre où chaque grain donne une tache distincte. Chaque tache de diffraction étant due à la présence de plusieurs cristallites, il n'est pas possible d'évaluer le nombre de cristallites par cristal.

Relation entre les sous-structures des grains de BrAg et la dimension des taches des diagrammes de Laue ou des diagrammes de cristal tournant. — Le cristal contenant des cristallites désorientés, on doit observer un diagramme de Laue avec astérisme et la longueur de l'astérisme doit être directement fonction de la dispersion angulaire de désorientation. Les extrémités de la tache d'astérisme sont faibles car elles correspondent aux cristallites les plus désorientés donc en nombre moindre.

Pour plusieurs clichés, on a trouvé des longueurs d'astérisme atteignant $\pm$ 5°. Ce résultat est inférieur à la limite déterminée précédemment, mais il correspond aux cas les plus fréquents de désorientation.

Les diagrammes de cristal tournant permettent une bien meilleure appréciation de la désorientation des cristallites. Dans le cas où les taches de diffraction sont sur la ligne équateur, on montre qu'une désorientation α autour d'un axe [110] perpendiculaire à la verticale provoque un déplacement angulaire β vertical de la tache par rapport au centre de la chambre tel que l'on ait :

$$\sin\left(\frac{\beta}{2}\right) = \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) . \sin \theta$$

où θ est l'angle de Bragg.

On calcule que α est compris entre 4° et 15° mais, pour des cristaux très perturbés, on a noté des valeurs atteignant $\sim$ 23°. On obtient dans ce cas un recoupement excellent avec les diagrammes de cristaux fixes.

Les taches de Laue avec astérisme sont surtout visibles avec les plus gros cristaux (500 à 700 μ), parce que le volume de matière irradiée est suffisamment grand. Il est possible d'autre part que les gros cristaux tabulaires soient, plus facilement que les petits, sujets à des désorientations car ils sont plus flexibles.

Or, l'existence de déformations plastiques dans un cristal de bromure d'argent a été récemment observée par R. H. Herz [5] qui a montré que l'angle de désorientation pouvait atteindre 10°.

Influence de la présence d'un dépôt microcristallin de BrAg à la surface des monocristaux de BrAg. — On pourrait expliquer l'apparition des taches Debye observées, en supposant que lors de la préparation des cristaux, il se forme un dépôt orienté de microcristaux sur leurs faces à grand développement. Cependant, ce dépôt est peu probable car il faudrait supposer que les microcristaux ne soient pas à plat sur le gros cristal support et par suite qu'ils ne soient pas en épitaxie simple.

Toutefois, pour réfuter cette hypothèse, nous avons effectué deux séries d'expériences.

α) On a corrodé les cristaux par une solution diluée d'hyposulfite de sodium ou de bromure de potassium. Le lavage a été effectué de façon à éviter toute précipitation de BrAg par destruction du complexe argentique formé. Le cristal a été attaqué plusieurs fois jusqu'à corrosion apparente du cristal (*fig.* 8). Dans ces conditions, on peut admettre que la surface du cristal a complètement été débarrassée des microcristaux superficiels. Or, les diagrammes de diffraction ne révèlent pratiquement aucune différence. Il est prouvé que des cristallites existent dans le cristal et qu'ils ne sont pas principalement localisés à la surface.

β) On a déposé des microcristaux sur un monocristal ne donnant pas de taches d'orientation Debye-Scherrer. On a recouvert le cristal d'une solution ammoniacale saturée en BrAg, puis ajouté un peu d'eau pour provoquer la précipitation de microscristaux de BrAg. Le diagramme de diffraction des cristaux ainsi traités montre qu'il y a bien eu dépôt de petits cristaux mais sans orientation privilégiée.

Ces expériences prouvent qu'il n'y a pas interférence dans la diffraction entre les désorganisations orientées et un hypothétique dépôt microcristallin orienté sur les gros cristaux.

Désorganisations orientées provoquées par photolyse. — Les clichés de diffraction témoignent de la présence indubitable de cristallites dans des cristaux préparés à l'obscurité. On a en outre observé que les dislocations analogues peuvent être produites par la lumière (mais non par les rayons X).

Des cristaux sans sous-structures apparentes (*fig.* 9) ont été exposés à la lumière solaire et des clichés de diffraction furent pris après différents temps d'exposition. Au bout d'une heure, au diagramme de Laue, se superposent de très faibles taches Debye-Scherrer d'orientation [110]. Puis ces taches s'intensifient pour des durées d'exposition plus longues. Au bout de six heures d'exposition, on obtient un intense diagramme de dislocations orientées suivant [110], tandis que les taches de Laue ont presque complètement disparu (*fig.* 10). Sur ces diagrammes, on note aussi l'apparition des anneaux Debye-Scherrer de l'argent.

Discussion et conclusions. — Nous avons établi que la principale désorientation des cristallites existant dans un monocristal de BrAg est une rotation autour d'un axe dont l'indice est toujours 110. Ce type de désorientation peut provenir du mode de croissance des cristaux de BrAg. Il est, en effet, intéressant de remarquer que les arêtes d'un cristal de BrAg sont constituées par des rangées [110].

Lorsque le cristal grossit, l'arête initialement siège d'une désorientation cristalline, se trouve à l'intérieur du cristal. Ce schéma, qui n'est qu'une hypothèse, peut cependant convenablement expliquer la présence des sous-structures observées à l'intérieur des cristaux de BrAg.

Cependant, la formation du même type de sous-structure a été observée sur des cristaux exposés à la lumière solaire. Il est probable que les rangées [110] du cristal de bromure d'argent sont relativement plus résistantes que les autres et que les zones de rupture sont toujours les mêmes quelle qu'en soit la cause.

L'existence des sous-structures orientées dans le bromure d'argent est en accord avec les hypothèses de quelques auteurs et notamment de C. R. Berry et R. L. Griffith sur le mécanisme du noircissement direct à la lumière.

Manuscrit reçu le 5 juillet 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Herz (R. H.) et Grounsell (G. V.), *Intern. Konf. Wiss. Phot. Koln.*, septembre 1956 et *Sc. Indust. Phot.*, 1956 [2], **27**, 432.
[2] Berry (C. R.) et Griffith (R. L.), *Acta Cryst.*, 1950, **3**, 219.
[3] Berry (C. R.), *Norelco Reporter*, 1956, **3**, 3.
[4] Polanyi (M.), *Z. Physik*, 1921, **7**, 149.
[5] Herz (R. H.), *J. Photogr. Sc.*, 1960, **8**, 2.

EXPOSÉ ET MISE AU POINT BIBLIOGRAPHIQUE

MESURE DES INDICES DE RÉFRACTION DANS L'INFRAROUGE

Par Mme Josette VINCENT-GEISSE et M. Jean LECOMTE,
Laboratoire de Recherches Physiques, Sorbonne.

Résumé. — Les mesures d'indices de réfraction dans l'infrarouge ont été très nombreuses ces dernières années. Après avoir rappelé l'intérêt qu'elles présentent dans différents domaines, nous décrivons les méthodes utilisées, en insistant sur les plus nouvelles, et nous donnons une bibliographie des travaux effectués récemment sur cette question.

Abstract. — There have been numerous measurements of refractive indices in the infrared in recent years. After recalling the interest which they present in different domains, we have described the methods utilized, principally the newer ones, and compiled a bibliography of the work recently carried out on this subject.

Les mesures d'indices dans l'infrarouge, bien que très anciennes, étaient relativement peu nombreuses jusqu'à ces dernières années, et se présentaient souvent comme une simple extension des mesures effectuées dans la région visible du spectre.

L'un d'entre nous avait publié en 1955 [42] une mise au point des méthodes utilisées et des résultats obtenus et concluait en ces termes : « La réfractométrie dans l'infrarouge reste encore un vaste champ ouvert aux déterminations expérimentales et aux vérifications des théories. »

Les mesures d'indices connaissent, depuis cette époque, précisément, un regain de faveur, les publications relatives à ce sujet, datant seulement des cinq dernières années, étant aussi nombreuses que celles qui avaient paru auparavant.

Nous avons donc pensé qu'il serait utile de reprendre la question, d'examiner les raisons qui motivent le renouveau de son intérêt et de décrire les méthodes nouvellement utilisées comme les résultats obtenus.

Introduction. Intérêt des mesures dans l'infrarouge d'indices de réfraction. — 1° Encore récemment les mesures d'indices dans l'infrarouge présentaient un intérêt principalement à deux points de vue :

a) Recherche dans un domaine étendu de longueurs d'onde, de cristaux transparents et présentant la plus grande dispersion possible. C'est dans ce but que l'on a sélectionné successivement, par exemple, le bromo-iodure de thallium, le bromure, puis l'iodure de césium.

b) Vérification des différentes formules de dispersion proposées, comme celles de Cauchy ou de Ketteler-Helmholtz, et prévision des longueurs d'onde propres d'absorption.

2° Ces dernières années, différents travaux relatifs à d'autres sujets, ont conduit à exécuter de nouvelles mesures d'indices de réfraction dans l'infrarouge et l'intérêt porté à ces mesures s'est considérablement élargi et diversifié.

a) La détermination de l'intensité des bandes d'absorption de corps en solution exige la connaissance de l'indice du solvant : on a été ainsi amené à mesurer l'indice des solvants usuels dans l'infrarouge.

b) La théorie des vibrations des ions, à l'intérieur d'un cristal ionique, fait intervenir des fréquences propres de vibration ; celles-ci sont difficiles à obtenir par les méthodes usuelles de transmission, à cause de l'absorption considérable à l'intérieur de ces bandes. La détermination de l'indice de réfraction, jointe à celle de l'indice d'absorption, fournit, avec précision, les fréquences cherchées. Quelques mesures d'indices ont été effectuées dans ce but.

c) D'une manière plus générale, intensité de bande et indice de réfraction au voisinage d'une bande sont liés dans les théories de la dispersion. Les mesures d'indices de réfraction sont utiles, d'une part, pour vérifier ces théories, et, d'autre part, pour remplacer les mesures d'intensités partout où ces dernières se montrent difficiles, c'est-à-dire principalement dans le cas des bandes très fortes.

d) Si nous passons aux métaux, la théorie de Drude relie les constantes optiques à un certain nombre de grandeurs, conductibilité, concentration des électrons libres, temps de relaxation ; leur mesure directe est donc également intéressante.

e) Enfin, on a assisté, ces dernières années, à un développement considérable de l'utilisation des semi-conducteurs. Là encore la mesure des constantes optiques présente un intérêt théorique et pratique de premier ordre.

f) Nous citerons encore pour mémoire, la construction de filtres interférentiels ou de couches antiréfléchissantes, qui exige la connaissance des constantes optiques d'un grand nombre de corps.

Quand on considère le déplacement du centre d'intérêt de ces mesures d'indices de réfraction, on voit donc que, d'abord attaché à des zones de grande transparence des substances, pour des fins essentiellement pratiques (construction de spectrographes), pour des raisons théoriques et de nouvelles applications, il englobe maintenant les régions d'absorption. De nouvelles techniques ont été donc en même temps mises au point pour s'adapter au cas des corps absorbants. Ce sont ces méthodes, tant anciennes que nouvelles, que nous allons maintenant passer en revue, en nous limitant, dans chaque cas, aux résultats récents.

I. **Méthode du prisme.** — Chaque fois que l'on a affaire à un corps transparent, et se présentant sous forme de cristaux de grandes dimensions, c'est la méthode du prisme qui se montre la plus précise, soit que l'on opère au minimum de déviation, soit que l'on utilise l'autocollimation. Ces procédés anciens, simples et bien connus, ont été l'objet d'améliorations de détail mais ils conduisent à une précision accrue. S'il s'agit seulement d'étendre au proche infrarouge les méthodes classiques dans le visible, il suffit de mettre à la sortie de l'oculaire un convertisseur d'image [11] ; on arrive ainsi à 1,1 μ ou même à 1,4 μ. Mais nous nous intéresserons ici surtout aux méthodes spéciales à l'infrarouge et permettant d'aller beaucoup plus loin.

Rodney et ses collaborateurs transposent simplement dans l'infrarouge la méthode classique dans le visible, du prisme monté sur la plateforme d'un goniomètre placé au minimum de déviation ; à l'extrémité de l'oculaire, l'œil se remplace par le récepteur infrarouge ; par suite du temps assez long que demanderait la recherche directe du minimum de déviation pour chaque radiation, on simplifie les mesures en remarquant que, en passant d'une radiation à la suivante, la variation de la déviation représente le double de celle de l'angle d'incidence sur le prisme : les mouvements des deux bras du goniomètre se lient donc l'un à l'autre par des engrenages [61] ou par d'autres systèmes mécaniques plus anciens.

On a mesuré ainsi l'indice du bromure de césium [61], de la silice fondue [62], du bromoiodure de thallium [63], du saphir synthétique [45] et du trisulfure d'arsenic [64]. La précision atteint quelques unités de la 5e décimale.

La même méthode, mais avec autocollimation, a été utilisée à la mesure de l'indice de quelques verres dans le proche infrarouge [17], [7] et de sulfures [14] dans leur zone de transmission. C'est par autocollimation également, en augmentant considérablement la précision qu'ont été mesurés les indices de 193 verres d'optique entre le visible et 1,7 μ [55]. L'erreur ne dépasse pas 6.10^{-6} sur l'indice.

Toutes les méthodes précédentes supposent un montage particulier et permanent. Quand on a à effectuer un petit nombre seulement de mesures, il peut être avantageux d'utiliser un spectrographe ordinaire en lui apportant quelques modifications. Dans cet ordre d'idées, nous relevons trois méthodes : MacAlister, Villa et Salzberg [3] installent le prisme à étudier à la place du prisme ordinaire dans un spectrographe infrarouge Perkin-Elmer et l'étudient par autocollimation. Les déterminations se font rapidement avec une précision encore bonne (2 unités de la 4e décimale) ; cette méthode a été appliquée à l'étude de verres d'optique [12], de la silice fondue à haute température [79], du sélénium et du germanium [65], [66] ; ces deux derniers corps présentent des difficultés supplémentaires car, étant opaques dans le visible, aucun réglage visuel ne s'avère possible, et la méthode d'autocollimation reste précieuse dans ce cas ; leur dispersion à peu près nulle dans certains domaines oblige d'autre part à utiliser un dispositif dispersif supplémentaire. D'autres auteurs recourent au même spectrographe, mais en remplaçant la boîte contenant la source par un montage goniométrique comportant le prisme étudié au minimum de déviation [18]. L'indice du sulfure de cadmium entre 1 et 15 μ, a été déterminé de cette manière.

Nous mêmes avons réalisé, au Laboratoire de Recherches Physiques, un réfractomètre pouvant s'adjoindre à un spectrographe Perkin-Elmer simple faisceau, en conduisant à la sortie de celui-ci, les radiations monochromatiques dans un montage de Wadsworth avec prisme à étudier au minimum de déviation et en faisant rentrer ensuite ces radiations à l'intérieur du spectrographe pour les détecter. Nous avons réalisé, avec cet appareil, des mesures d'indice de verres de la maison Parra Mantois [87].

La mesure des indices du tellure [25], [8] jusqu'à 14 μ et de l'antimoniure de gallium [16] se réfère aussi à la méthode du prisme, avec des variantes.

Enfin la dispersion de quelques gaz comme HCl [32], HBr et CF_4 [67], [68], se mesure par la méthode du prisme creux, déjà utilisée autrefois par Rollefson. Dans ce dernier cas, l'intérêt des mesures ne se relie plus à l'utilisation pratique des substances étudiées, comme dans les cas qui précèdent, mais il s'agit alors de calculer l'intensité de bandes d'absorption, extrêmement fortes, et d'en déduire ensuite, avec l'aide d'une hypothèse sur la forme de la fonction potentiel, les valeurs du moment électrique de la molécule et de sa dérivée première par rapport à la distance internucléaire.

II. **Méthode de la réflexion totale.** — Introduite dans l'infrarouge par Seegert, elle avait été utilisée par l'un d'entre nous à la mesure de l'indice de quelques liquides entre le visible et 3 μ. Nous venons de la reprendre depuis peu, d'abord avec un réfractomètre constitué par des prismes en verre, ensuite par des prisme en pentaséléniure d'arsenic, avec lesquels nous pourrons effectuer des mesures jusqu'à 18 μ [87].

Dans un travail récent, Jaffé et ses collaborateurs [31], choisissent à nouveau la méthode en lui apportant quelques améliorations, en particulier en étendant le domaine étudié jusqu'à 6 μ, grâce à l'utilisation de deux prismes en trisulfure d'arsenic ; ils déterminent ainsi l'indice de quelques liquides organiques. La méthode se montre précieuse, en permettant des mesures d'indices relativement précises

$$(\Delta n = 3{,}10^{-4})$$

dans des régions de faible absorption, où la méthode du prisme creux ne peut plus s'appliquer.

Il semblait qu'elle cessait d'être utilisable lorsque l'indice d'absorption $\varkappa$ dépassait la valeur 0,01, le phénomène de réflexion totale n'existant plus à proprement parler. Malgré ce grave inconvénient, Jaffé dans un article très récent [33], utilise tout de même

la mesure de la lumière transmise à l'étude de la variation de l'indice, à travers des bandes d'absorption pas trop fortes de certains liquides. Pour cela, il réduit l'épaisseur de la couche liquide à des valeurs très faibles, de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde, et il introduit des calculs correctifs, pour tenir compte de la valeur de l'indice $\varkappa$. La précision devient naturellement moindre ($\Delta n = 0{,}03$ pour $\varkappa = 0{,}03$) et nécessite, pour les corrections, l'utilisation d'un calculateur électronique.

III. **Méthodes interférentielles.** — Dans l'infrarouge, les substances présentent, pour la plupart, de nombreuses bandes d'absorption, et les méthodes précédentes, les plus précises, correspondent à un champ d'application restreint. Dès que l'on se trouve au voisinage des bandes d'absorption, elles se montrent inutilisables et, dans ces conditions, les méthodes interférentielles, moins précises en général, deviennent intéressantes ; il en est de même dans le cas de substances solides transparentes, mais de très haut indice.

L'étude des spectres cannelés, appliquée depuis longtemps, a été utilisée dans plusieurs travaux récents avec de nombreuses améliorations, tant au point de vue pratique que dans les calculs.

S'il s'agit de solides, la méthode consiste à tailler une lame mince à faces parallèles, à mesurer son épaisseur, et à pointer les maximums des franges d'interférences obtenues. La formule fondamentale $2ne = K\lambda$ (1) valable tant que la substance reste transparente ou légèrement absorbante, permet alors de calculer n, connaissant K. En réalité, il faut bien souligner que la détermination exacte de K ne se montre en général pas possible avec un seul spectre, sauf si l'indice n est déjà connu en un point de l'intervalle étudié : Moss et ses collaborateurs [48] insistent sur cette question que certains auteurs semblent négliger [52] et nous-mêmes avons montré, dans le cas des liquides [83], qu'il était nécessaire de comparer plusieurs spectres, correspondant à des épaisseurs différentes.

Par cette méthode ont été déterminés les indices de l'antimoniure d'indium [48] entre 7 et 20 μ, du sulfure de zinc entre le visible et 15 μ [51], du germanium [52], dans le proche infrarouge, ces dernières mesures ayant suscité les réserves citées plus haut, de l'oxyde de titane [13] et du sélénium entre 9 et 23 μ [8].

S'il est difficile de tailler des lames de l'épaisseur désirée, il devient quelquefois possible, par contre, de déposer le corps en couche mince par évaporation thermique, en prenant toutes précautions pour aboutir à une couche propre et non lacunaire : l'indice du sélénium a été mesuré ainsi dans le proche infrarouge [41].

Nous nous étendrons un peu plus longuement, à titre d'exemple, sur le cas des liquides, que nous venons d'étudier personnellement [81, 83, 84] et qui se montre plus délicat que celui des solides.

Le premier problème, qui se pose, concerne l'interféromètre et c'est là qu'ont été réalisées les améliorations les plus importantes, correspondant à l'utilisation dans l'infrarouge de nouveaux corps transparents de haut indice et au dépôt, par évaporation thermique, d'un nombre de plus en plus grand de diélectriques variés. Kagarise [35] utilise un interféromètre, constitué par des lames de germanium et nous-mêmes [84] une cuve à épaisseur variable avec des faces de bromoiodure de thallium. On peut aussi prendre des lames d'une substance de bas indice et les recouvrir d'une couche mince d'un diélectrique transparent de haut indice comme le pentaséléniure d'arsenic par exemple [81]. Dans ce dernier cas, l'épaisseur de ces couches n'est pas indifférente, et il faut prendre garde à certains phénomènes d'interférences additionnels [82].

Au point de vue des calculs, et comme dans le cas des solides, le problème le plus difficile à résoudre reste la détermination de l'ordre d'interférences K dans la formule (1). L'étude d'un seul spectre cannelé ne nous fournit qu'une relation différentielle entre la variation de K et celle de n. La détermination absolue de K exige le dépouillement de plusieurs spectres cannelés, obtenus en faisant varier une des grandeurs de la relation (1). Dans cet ordre d'idées deux nouveaux procédés ont été proposés : Kagarise [37] opère à épaisseur constante et modifie n d'une façon continue, en partant d'un liquide d'indice connu, le sulfure de carbone, par exemple, et mélangeant à celui-ci le liquide d'indice cherché, en proportion de plus en plus grande, jusqu'à obtenir ce dernier à l'état pur. On suit alors une cannelure d'ordre donné par continuité d'un spectre au suivant. Nous-mêmes [83], opérant au contraire toujours avec le liquide pur, faisons varier l'épaisseur d'une façon continue, grâce à l'utilisation, comme interféromètre, d'une cuve à épaisseur variable. L'une ou l'autre de ces méthodes permet de déterminer K sans ambiguité.

Malgré ces perfectionnements, la méthode interférentielle des spectres cannelés fournit une précision bien moindre que les précédentes. L'une des raisons provient de l'erreur sur la mesure de l'épaisseur e, l'autre de ce que l'on travaille sur un spectre continu ; le repérage des longueurs d'onde est alors beaucoup moins précis que si l'on opère avec des raies étalons. (Rank et ses collaborateurs [52] ont toutefois obvié à cette dernière difficulté dans le proche infrarouge en enregistrant en même temps spectre cannelé et raies d'émission.) La précision sur n ne dépasse pas, en général, quelques unités de la 3e décimale.

Les mesures d'indices de Kagarise et ses collaborateurs [36] ont été effectuées dans le but de déterminer, par ce moyen détourné mais précis, les intensités de bandes très fortes de liquides.

Enfin le procédé interférentiel a été appliqué avec succès à la mesure d'indices de gaz. Rank et ses collaborateurs [53, 54] ont déterminé ainsi, avec une haute précision, l'indice de l'air dans le proche infrarouge, Legay et collaborateurs [43, 48], l'indice du gaz chlorhydrique et du gaz carbonique à l'intérieur même des bandes d'absorption, entre les raies de vibration-rotation.

La méthode interférentielle s'étend sans difficulté au cas où la substance est légèrement absorbante. Tant que $\varkappa$ reste petit par rapport à n, la position des maximums et des minimums demeure inchangée et correspond à des ordres d'interférences entiers. Par contre la transmission se trouve diminuée. La position des franges permettra donc encore de calculer n, comme précédemment, et la mesure de la transmission maximum, par exemple, conduira au calcul de $\varkappa$. Genzel et ses collaborateurs [20, 21] ont déterminé ainsi les constantes optiques de LiF, NaCl, KCl et KBr dans l'infrarouge lointain, au delà de leur bande d'absorption. Ils trouvent, comme il fallait s'y attendre, une valeur

de n constante et égale à la racine carrée de la constante diélectrique statique. Markov et Lindstrem [46] appliquent la même méthode au bismuth, Huldt et Staflin [30] au sulfure de zinc et au germanium en couches très minces ; ces derniers montrent que les constantes optiques varient, dans une certaine mesure avec les conditions d'évaporation et que ces évaporations doivent donc être effectuées avec beaucoup de soin.

Enfin, à ces méthodes interférentielles, on peut rattacher des mesures, non pas d'indices mais de biréfringences, au moyen de spectres cannelés de biréfringence [80, 69], en lumière polarisée.

IV. **Méthodes par réflexion.** — Nous avons vu que l'intérêt porté aux mesures d'indices de réfraction, d'abord réservé aux substances transparentes, s'était étendu ensuite aux zones d'absorption de ces mêmes substances et même aux corps complètement absorbants comme les métaux. Sauf cas très particuliers, aucune des méthodes précédentes ne convient dans ces conditions, puisqu'elles impliquent toutes la traversée de la substance par le rayonnement, et qu'on ne dispose alors, à la sortie, que d'une énergie trop faible pour effectuer des mesures. L'énergie réfléchie par contre devient en général considérable, et presque toutes les mesures d'indices de corps très absorbants sont fondées sur des études par réflexion.

Une difficulté se pose dès l'abord : toute propriété optique de la substance est fonction, non seulement de l'indice de réfraction n mais aussi de l'indice d'absorption $\varkappa$. Lorsque $\varkappa$ reste petit par rapport à n, inférieur à 0,1 par exemple, ce qui peut déjà correspondre à une absorption assez forte, le pouvoir réflecteur ne dépend, en réalité, que de n à l'approximation obtenue en général, et la mesure permettra de calculer n directement. Par contre, lorsque $\varkappa$ n'apparaît plus petit par rapport à n, les contributions de n et $\varkappa$ deviennent impossibles à séparer dans la réflexion, et nous aurons deux grandeurs à déterminer au lieu d'une seule. Deux manières différentes de considérer le problème s'offrent alors. Nous pouvons considérer n et $\varkappa$ comme deux grandeurs quelconques et effectuer deux mesures indépendantes qui nous fournissent deux relations numériques entre n et $\varkappa$; mais nous pouvons aussi, partant d'une étude théorique des phénomènes d'absorption et de dispersion, chercher, à priori, une relation entre n et $\varkappa$ et n'effectuer ensuite qu'une seule mesure pour déterminer ces deux quantités. (Il est important de remarquer ici que les deux mesures ou la mesure unique s'entendent à longueur d'onde déterminée.)

Nous allons maintenant passer en revue les différents procédés utilisés pratiquement en nous y étendant un peu plus largement que sur les précédentes ; ces mesures par réflexion sont, en effet, beaucoup moins classiques que celles par réfraction, ou même par interférences et elles ont pris ces dernières années une grande extension.

A. Substances moyennement absorbantes. — Le pouvoir réflecteur s'exprime par la formule

$$R = \frac{(n-1)^2 + \varkappa^2}{(n+1)^2 + \varkappa^2}.$$

Étant donné que la précision sur R reste en général, voisine de 1 %, la mesure de R donnera directement n, si $\varkappa$ est inférieur à 0,1. Dans ce cas, $\varkappa$ pourra être mesuré par ailleurs, par transmission, par exemple.

La méthode se recommande par sa simplicité, mais non par sa précision très médiocre ; elle ne s'utilisera que pour arriver rapidement à une valeur approchée d'un indice [15], ou lorsque les méthodes précédentes deviennent inutilisables. Caldwell et Yan [8] ont déterminé, de cette manière, l'indice du sélénium entre 30 et 150 μ. Les anciennes mesures de Centano sur l'eau reposent sur ce principe. Ces derniers temps, la méthode a été reprise par M. Caméo [10] pour des liquides, en dehors de leurs bandes d'absorption forte. Enfin des composés organiques, se présentant sous forme de poudre, peuvent s'étudier d'une manière semblable, en les faisant fondre puis solidifier au contact d'une lame d'indice connu [9].

Les constantes optiques du chloroforme se trouvent dans le travail de Lisitsa et Tsiashchenko [44] ; $\varkappa$ se mesure par absorption et n par réflexion mais aucun détail n'est donné sur la méthode utilisée par réflexion, pour éliminer l'absorption de la vapeur.

B. Substances très absorbantes. — 1° *Méthodes utilisant deux mesures à chaque longueur d'onde.* — Sans faire aucune hypothèse sur les relations qui peuvent exister entre n et $\varkappa$, on effectue deux mesures indépendantes de grandeurs liées à n et $\varkappa$. Plusieurs méthodes ont été proposées récemment :

a) Une des techniques les plus simples consiste à mesurer la transmission en couche très mince et le pouvoir réflecteur sous incidence normale. Ce procédé, qui se rapproche de celui indiqué plus haut en A, a été rendu possible dans le cas des substances très absorbantes par le fait que l'on sait réaliser maintenant, pour de nombreux corps, par évaporation thermique sous vide, des couches aussi minces, donc aussi peu absorbantes que l'on désire. Mais les propriétés optiques des couches très minces se montrent souvent différentes de celles du même corps à l'état massif, et il faut être très prudent dans la généralisation des résultats obtenus par de telles méthodes. Dans cet ordre d'idées, on peut citer les travaux de Hall et Ferguson [24] sur les sulfures de zinc et de cadmium, de Yoshinaga et Oetjen [88] sur l'antimoniure d'indium et de Hass [27] et collaborateurs sur les oxydes et fluorures de terres rares.

b) Si l'on utilise uniquement des mesures par réflexion, il faut exécuter deux mesures dans des conditions différentes. Simon [73, 74], par exemple, utilise deux angles d'incidence, 20° et 70° ; le montage apparaît assez délicat à réaliser et les calculs numériques sont fastidieux ; on peut toutefois les simplifier en utilisant toujours les mêmes angles d'incidence et construisant alors des abaques une fois pour toutes. D'une manière générale, les déterminations par réflexion ayant une précision médiocre, dépassant rarement 1 %, permettent souvent l'utilisation de graphiques ou abaques qui simplifient beaucoup les calculs. Cette méthode présente toutefois un inconvénient plus grave, dans le cas de substances anisotropes, l'interprétation des résultats, pour l'incidence de 70°, devenant alors très pénible. La méthode de Simon a été utilisée ensuite par d'autres auteurs : Simon, Mac Mahon [75] et Reitzel [56] l'emploient pour localiser avec précision la position des bandes

d'absorption du quartz et de différentes formes de la silice cristallisée ou fondue et étudier le passage d'une forme à une autre, quand la température varie. D'autres auteurs [5] mesurent les constantes optiques de l'arséniure de gallium, et en déduisent la masse effective des électrons de conduction. Enfin Neuroth [49] et Heilman [29] étudient, de la même manière, des verres entre 3 et 12 μ et le fluorure de lithium entre 15 et 36 μ.

Avery [4], d'autre part, préfère une méthode analogue, mais simplifiée, en se contentant de mesurer des rapports d'énergie réfléchie dans deux plans de polarisation différents. Roberts [57] détermine les constantes optiques du nickel et du tungstène en mesurant, sous grande incidence, les énergies réfléchies dans deux états de polarisation différents et en tire une étude théorique intéressante des électrons de conduction dans ces métaux. L'étude des métaux est rendue difficile par le fait que leur pouvoir réflecteur très élevé, voisin de 1, exige, dans sa détermination, une précision supérieure à ce que l'on obtient habituellement. Des auteurs [70, 71, 72] obvient à cette difficulté grâce à des réflexions multiples et déterminent, de cette manière, les constantes optiques de nombreux métaux à très haut pouvoir réflecteur.

c) Pour éviter les difficultés expérimentales et les calculs pénibles qui résultent de l'utilisation de grands angles d'incidence, surtout quand il s'agit de corps anisotropes, plusieurs méthodes à incidence normale ont été proposées à peu près simultanément. Abelès [1] avait indiqué la possibilité, dans l'étude des métaux, de recouvrir ceux-ci d'une couche mince transparente, à la fois pour les protéger de l'oxydation superficielle et pour faire varier le pouvoir réflecteur. Nous avons proposé et utilisé de notre côté [85, 86] une méthode fondée sur la détermination du pouvoir réflecteur, sous incidence normale, d'une part de l'échantillon solide étudié, et, d'autre part, du même échantillon recouvert, par évaporation, d'une couche mince d'un corps d'indice connu. Le dispositif expérimental apparaît ainsi très simple et l'interprétation des résultats conduit à des calculs élémentaires. S'il s'agit d'un liquide, une variante de la méthode [10] consiste à interposer une lame épaisse d'un corps d'indice connu.

La méthode de Kravet, fondée sur un principe un peu analogue, a été utilisée pour des métaux plongés dans des liquides d'indices variés et connus [76].

Enfin, Kendall et Turner [38] semblent, malgré le peu de détails de leur note, avoir effectué sur le fer, en couche mince, un travail tout à fait semblable aux précédents.

2° *Méthodes utilisant une seule mesure du pouvoir réflecteur à chaque longueur d'onde.* — *a*) L'indice de réfraction et l'indice d'absorption ne constituent pas deux grandeurs indépendantes ; c'est ce que l'on sous-entend implicitement en les faisant entrer dans un indice complexe $N = n - j\varkappa$. On suppose ainsi que N est une fonction analytique de la fréquence. Ceci revient, en fait, à supposer qu'il existe une relation linéaire entre le champ électrique et le déplacement électrique à l'intérieur de la substance considérée. Les conclusions, que l'on peut tirer de cette hypothèse, ont été étudiées ces dernières années, d'abord au point de vue électrique [6, 19], ensuite au point de vue optique [47].

S'il s'agit de l'étude du pouvoir réflecteur, qui nous intéresse ici, nous savons que le rapport $\mathfrak{R}$ des amplitudes des champs électriques réfléchi et incident est, à chaque instant, un nombre complexe, si la substance considérée est absorbante : $\mathfrak{R} = \dfrac{N-1}{N+1} = r\,e^{j\varphi}$.

Le pouvoir réflecteur mesuré s'écrit : $R = r^2$.

Supposant que $\mathfrak{R}$ est une fonction analytique de la fréquence, on trouve qu'il existe entre r et φ une relation intégrale. Autrement dit, si l'on connaît la variation de R pour toutes les fréquences, on peut en déduire, par le calcul numérique d'une intégrale, le déphasage φ en chaque point.

Pratiquement certains domaines de fréquences possèdent une influence prépondérante par rapport à d'autres, et on peut se limiter à un intervalle fini.

Cette méthode, très intéressante théoriquement, permet de déterminer n et $\varkappa$ à partir de la seule mesure du pouvoir réflecteur R dans un certain domaine de longueurs d'ondes. Elle a été appliquée, dans le cas de cristaux, par Robinson et Price [58, 59, 60], Hass et Sutherland [26], Abelès et Mathieu [2]. Elle se montre particulièrement précieuse dans le cas des cristaux ioniques, qui présentent un très petit nombre de bandes. Son inconvénient réside dans la longueur du calcul numérique des intégrales définies qu'elle implique ; l'emploi d'un calculateur électronique simplifie alors considérablement ces calculs.

Dans tous les travaux précédents, il s'agissait de déterminer la position et la forme exactes des bandes d'absorption. Dans le cas des cristaux, en effet, la détermination directe en reste souvent impossible, à cause de la grande intensité des bandes et de leur variation avec la direction du cristal. La détermination simultanée de n permet ensuite de comparer les valeurs obtenues à celles que donne la théorie de Drude, par exemple. La même méthode a été appliquée par Gottlieb [22], par Philipp et Taft [50] à la bande d'absorption du germanium, et par Kislovskii [39, 40] à des liquides et des cristaux.

b) Inversement, partant d'une théorie comme celle de Drude, qui nous fournit une relation entre n et $\varkappa$, on peut déterminer facilement n et $\varkappa$ à partir de la seule mesure du pouvoir réflecteur, et vérifier ensuite si les hypothèses faites sont exactes, aux erreurs expérimentales près. Cette méthode, moins générale que la précédente, puisqu'elle implique une théorie atomique des propriétés optiques, se montre d'une exécution beaucoup plus simple. De nombreux auteurs l'ont appliquée avec succès, C. Haas [23] à la calcite et au nitrate de sodium, Spitzer et collaborateurs [77, 78] aux différentes variétés de carbure de silicium. Si l'on veut ajuster les constantes rentrant dans les formules de dispersion, de manière à obtenir la meilleure concordance possible avec les résultats expérimentaux, il faut toutefois se lancer dans de longs calculs numériques de tâtonnement.

Encore beaucoup plus simple est la méthode essayée par Simon [73], et qui consiste, parlant le langage électrique, à appliquer les résultats de la transmission du champ électromagnétique le long des fils, et à utiliser les graphiques de Smith. Cette méthode, extrêmement simple, part de l'hypothèse de vibrateurs harmoniques, et suppose que l'indice complexe du milieu absorbant varie avec la fréquence de la même manière que l'impédance complexe d'un circuit résonant ; elle conduit toutefois à des résultats grossiè-

rement approchés, et ne peut être considérée comme une véritable méthode de mesure des constantes optiques.

V. **Filtres de Christiansen.** — Nous ne reviendrons pas sur le principe de la méthode des filtres de Christiansen déjà exposé précédemment [42]. La question vient d'être reprise récemment [34, 87] et nous en tirerons seulement quelques conclusions, relatives à la mesure des indices par ce procédé.

Comme on le sait, si l'on met en suspension une poudre dans un liquide, ou dans un gaz, on observe un maximum de transmission à la longueur d'onde pour laquelle les indices des deux corps se présentent comme égaux ; si l'indice du liquide est connu ou s'il s'agit d'air dans les conditions normales, on en déduit immédiatement l'indice du solide, et inversement. Toutefois la précision de cette détermination se montre très faible et atteint 1 % dans les meilleures conditions. En effet, si le liquide et la poudre sont parfaitement transparents dans la région considérée, les deux courbes de dispersion possèdent des pentes voisines et, dans ces conditions, le filtre obtenu apparaît très large avec un maximum difficile à pointer. Au contraire, si l'on se trouve au voisinage d'une bande d'absorption de l'un des corps, les courbes de dispersion peuvent présenter des pentes très différentes et le filtre se montrer très étroit ; par contre l'absorption propre de la substance risque alors de déplacer le maximum de transmission vers l'extérieur de la bande, et de donner une erreur systématique dans l'indice. Dans ce dernier cas, l'utilisation de plusieurs filtres d'épaisseurs différentes permet d'observer le phénomène et d'y remédier dans une certaine mesure.

La méthode des filtres de Christiansen a tout de même été utilisée dans certains cas particuliers, en complément d'autres méthodes plus précises : dans l'étude des spectres cannelés par exemple, dans les domaines où l'on ne possède aucune idée, à priori, de la valeur de l'ordre d'interférence K, la réalisation d'un filtre de Christiansen fournit alors une valeur approchée de l'indice, qui peut être précieuse dans le choix de l'ordre d'interférences. S'il s'agit de filtres de poudres dans l'air, on saura ainsi si l'indice du solide passe ou non par la valeur 1 [87].

Conclusion. — Noús avons vu, dans ce qui précède, le développement considérable, pris par les mesures d'indices dans l'infrarouge ces dernières années. De nombreuses méthodes ont été proposées, applicables à des corps aussi bien absorbants que transparents, et dans des états physiques variés.

Tant qu'il s'agit de substances solides, transparentes dans un domaine étendu de longueurs d'ondes, la vieille méthode du prisme s'avère toujours la meilleure ; s'il y a absorption faible, les méthodes interférentielles deviennent utiles et enfin, si l'on s'adresse à des corps très absorbants, c'est aux procédés par réflexion qu'il faut recourir. Le cas des liquides se présente comme plus délicat, car ils possèdent tous des bandes d'absorption plus ou moins intenses dans l'infrarouge, et les méthodes de réflexion totale, de spectres cannelés et de réflexion sous incidence normale présentent toutes des avantages et des inconvénients ; on rencontre encore quelques cas où aucun de ces procédés ne semble vraiment satisfaisant. Enfin, s'il s'agit de déterminer l'indice de gaz, la méthode interférentielle et celle du prisme creux donnent toutes deux d'excellents résultats.

On peut donc dire que chaque cas particulier a reçu, à quelques exceptions près, une solution appropriée. Il reste, pour les appliquer, un champ encore vaste, aussi bien en ce qui concerne le domaine spectral que la variété des substances à étudier. Ce sera sans doute la tâche des prochaines années. On constate, en effet, actuellement une disproportion vraiment trop grande entre le nombre de spectres d'absorption (ou de réflexion) infrarouge et la connaissance des indices de réfraction dans le même domaine. On explique aisément d'ailleurs ce résultat par suite de la facilité des mesures dans le premier cas et de leur difficulté dans le deuxième, mais nous avons essayé de souligner tout l'intérêt que présente la détermination de la dispersion des substances et les possibilités variées que l'on possède pour aborder cet important problème.

Manuscrit reçu le 22 juin 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Abelès (F.), *Ann. Physique*, 1950, **5**, 596-640 et 706-782.
[2] Abelès (F.) et Mathieu (J. P.), *Ann. Physique*, 1958, **3**, 5-32.
[3] McAlister (E. D.), Villa (J. J.) et Salzberg (C. D.), *J. O. S. A.*, 1956, **46**, 485-487.
[4] Avery (D. G.), *Proc. Phys. Soc.*, 1952, **65** B, 425-428.
[5] Barcus (L. C.), Perlmutter (A.) et Callaway (J.), *Phys. Rev.*, 1958, **111**, 167-168.
[6] Bode (H. W.), Network Analysis and Feedback Amplifier Design, N. Y., 1947.
[7] Brewster (G. F.), Kunz (J. F.) et Rood (J. L.), *J. O. S. A.*, 1958, **48**, 534-536.
[8] Caldwell (R. S.) et Yan (H. Y.), *Phys. Rev.*, 1959, **114**, 664-675.
[9] Cameo-Bosco (M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **248**, 1642-1644.
[10] Cameo-Bosco (M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1959, **249**, 2761-2763.
[11] Carlan (A. J.) et Paul (F. W.), *Rev. Sc. Instr.*, 1956, **27**, 772-773.
[12] Cleek (G. W.), Villa (J. J.) et Hohner (C. H.), *J. O. S. A.*, 1959, **49**, 1090-1095.
[13] Cronemeyer (D. C.), *Phys. Rev.*, 1959, **113**, 1222-1226.
[14] Czyzak (S. J.), Baker (W. M.), Crane (R. C.) et Howe (J. B.), *J. O. S. A.*, 1957, **47**, 240-243.
[15] Dewulf (G.) et Gans (F.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1857-1859.
[16] Edwards (D. F.) et Hayne (G. S.), *J. O. S. A.*, 1959, **49**, 414-415.
[17] Forrest (J. W.) et Straat (H. W.), et Dakin (R. K.), *J. O. S. A.*, 1956, **46**, 143-144.
[18] Francis (A. B.) et Carlson (A. I.), *J. O. S. A.*, 1960, **50**, 118-121.
[19] Fröhlich (H.), Theory of Dielectrics, Oxford, 1949.
[20] Genzel (L.) et Klier (M.), *Z. Physik*, 1956, **144**, 25-30.
[21] Genzel (L.), Happ (H.) et Weber (R.), *Z. Physik*, 1959, **154**, 13-18.
[22] Gottlieb (M.), *J. O. S. A.*, 1960, **50**, 343-349.
[23] Haas (C.), *Thèse*, Amsterdam, 1956.

[24] Hall (J. F.) et Ferguson (W. F. C.), *J. O. S. A.*, 1955, **45**, 714-718.
[25] Hartig (P. A.) et Loferski (J. J.), *J. O. S. A.*, 1954, **44**, 17-18.
[26] Hass (M.) et Sutherland (G. B. B. M.), *Proc. Roy. Soc.*, 1956, **236** A, 427-445.
[27] Hass (G.), Ramsey (J. B.) et Thun (R.), *J. O. S. A.*, 1959, **49**, 116-120.
[28] Hayotte (J.), Legay (F.) et Barchewitz (P.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 1-55.
[29] Heilmann (G.), *Z. Physik*, 1958, **152**, 368-383.
[30] Huldt (L.) et Staflin (T.), *Optica Acta*, 1959, **6**, 27-36.
[31] Jaffe (J. H.) et Oppenheim (U.), *J. O. S. A.*, 1957, **47**, 782-784.
[32] Jaffe (J. H.), Hirshfeld (M. A.) et Kimel (S.), *J. Chem. Phys.*, 1958, **29**, 675-676.
[33] Jaffé (J. H.), Goldring (H.) et Oppenheim (U.), *J. O. S. A.*, 1959, **49**, 1199-1202.
[34] Jeramec (A.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1958 ; *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **247**, 1846-1848.
[35] Kagarise (R. E.) et Mayfield (J. W.), *J. O. S. A.*, 1958, **48**, 430-431.
[36] Kagarise (R. E.), *J. Chem. Phys.*, 1959, **31**, 1258-1261.
[37] Kagarise (R. E.), *J. O. S. A.*, 1960, **50**, 36-39.
[38] Kendall (D. L.) et Turner (A. F.), *J. O. S. A.*, 1959, **49**, 1140.
[39] Kislovskii (L. D.), *Optics and Spectroscopy*, 1959, **6**, 529-530.
[40] Kislovskii (L. D.), *Optics and Spectroscopy*, 1959, **7**, 201-206.
[41] Koehler (W. F.), Odencrantz (F. K.) et White (W. C.), *J. O. S. A.*, 1959, **49**, 109-115.
[42] Lecomte (J.), *Revue d'Optique*, 1955, **34**, 150-163 ; *Nuovo Cimento*, Supp. 1955, **2**, série 10, 579-600.
[43] Legay (F.), *Cahiers de Physique*, 1957, **11**, 383-421 ; 1958, **12**, 8-39.
[44] Lisitsa (M. P.) et Tsiashchenko (IU. P.), *Optics and Spectroscopy*, 1959, **6**, 396-400.
[45] Malitson (I. H.), Murphy (F. V.) et Rodney (W. S.), *J. O. S. A.*, 1958, **48**, 72-73.
[46] Markov (M. N.) et Lindstrem (I. S.), *Optics and Spectroscopy*, 1959, **7**, 228-231.
[47] Moss (T. S.), Optical Properties of Semi-conductors, London, 1959.
[48] Moss (T. S.), Smith (S. D.) et Hawkins (T. D. F.), *Proc. Phys. Soc.*, 1957, **70** B, 776-784.
[49] Neuroth (N.), *Z. Physik*, 1956, **144**, 85-90.
[50] Philipp (H. R.) et Taft (E. A.), *Phys. Rev.*, 1959, **113**, 1002-1005.
[51] Piper (W. W.), Marple (D. T. F.) et Johnson (P. D.), *Phys. Rev.*, 1958, **110**, 323-326.
[52] Rank (D. H.), Bennett (H. E.) et Cronemeyer (D. C.), *J. O. S. A.*, 1954, **44**, 13-16.
[53] Rank (D. H.) et Shearer (J. N.), *J. O. S. A.*, 1954, **44**, 575.
[54] Rank (D. H.), Saksena (C. D.) et McCubbin (T. K.), *J. O. S. A.*, 1958, **48**, 455-458.
[55] Reitmayer (F.), *Optik Dtsch.*, 1956, **13**, 544-549.
[56] Reitzel (J.), *J. Chem. Phys.*, 1955, **23**, 2407-2409.
[57] Roberts (S.), *Phys. Rev.*, 1959, **114**, 104-115.
[58] Robinson (T. S.), *Proc. Phys. Soc.*, 1952, **65** B, 910-911.
[59] Robinson (T. S.) et Price (W. C.), *Proc. Phys. Soc.*, 1953, **64**, 969.
[60] Robinson (T. S.) et Price (W. C.), Molecular Spectroscopy, Institute of Petroleum, 1955.
[61] Rodney (W. S.) et Spindler (R. J.), *J. Res. Nat. Bur. Stand.*, 1953, **51**, 123.
[62] Rodney (W. S.) et Spindler (R. J.), *J. O. S. A.*, 1954, **44**, 677-679.
[63] Rodney (W. S.) et Malitson (I. H.), *J. O. S. A.*, 1956, **46**, 956-961.
[64] Rodney (W. S.), Malitson (I. H.) et King (T. A.), *J. O. S. A.*, 1958, **48**, 633-636.
[65] Salzberg (C. D.) et Villa (J. J.), *J. O. S. A.*, 1957, **47**, 244-246.
[66] Salzberg (C. D.) et Villa (J. J.), *J. O. S. A.*, 1958, **48**, 579.
[67] Schurin (B.) et Rollefson (R.), *J. Chem. Phys.* 1957, **26**, 1089-1091.
[68] Schurin (B.), *J. Chem. Phys.*, 1959, **30**, 1-5.
[69] Shields (J. H.) et Ellis (J. W.), *J. O. S. A.*, 1956, **46**, 263-265.
[70] Shklyarevskii (I. N.) et Miloslavskii (V. K.), *Optika i Spektroskopiia*, 1957, **3**, 361-367.
[71] Shklyarevskii (I. N.), Starunov (N. G.) et Padalka (V. G.), *Optika i Spektroskopiia*, 1958, **4**, 792-795.
[72] Shklyarevskii (I. N.) et Padalka (V. G.), *Optics and Spectroscopy*, 1959, **6**, 45-48.
[73] Simon (I.), *J. O. S. A.*, 1951, **41**, 336-345.
[74] Simon (I.), *J. O. S. A.*, 1951, **41**, 730.
[75] Simon (I.) et McMahon (H. O.), *J. Chem. Phys.*, 1953, **21**, 23-30.
[76] Skorniakov (G. P.) et Kirillova (M. M.), *Optics and Spectroscopy*, 1959, **6**, 159.
[77] Spitzer (W. G.), Kleinman (D. A.) et Walsh (D.), *Phys. Rev.*, 1959, **113**, 127-132.
[78] Spitzer (W. G.), Kleinman (D. A.) et Frosch (C. J.), *Phys. Rev.*, 1959, **113**, 133-136.
[79] Thomas (A. R.), Betz (H. T.), Mergerian (D.) et Oberheim (W. A.), *J. O. S. A.*, 1959, **49**, 497.
[80] Vergnoux (A. M.) et Ginouves (M. F.), *Nuovo Cimento*, Suppl. vol. **2**, série X, 807-815.
[81] Vincent-Geisse (J.) et Lecomte (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 577-580.
[82] Vincent-Geisse (J.) et Lecomte (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 2152-2155.
[83] Vincent-Geisse (J.) et Lecomte (J.), *Revue d'Optique*, 1958, **37**, 295-305.
[84] Vincent-Geisse (J.), Queyrel (M.) et Lecomte (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **247**, 1841-1843.
[85] Vincent-Geisse (J.), Queyrel (M.) et Lecomte (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **247**, 1330-1332.
[86] Vincent-Geisse (J.), Queyrel (M.) et Lecomte (J.), *Rev. Univ. des Mines*, 9e série, 1959, **15**, 507-510.
[87] Vincent-Geisse (J.) et Lecomte (J.), *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 841-848.
[88] Yoshinaga (H.) et Oetjen (R. A.), *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 526-531.

LETTRES A LA RÉDACTION

POLARISATION NUCLÉAIRE PAR « DOUBLE EFFET », EN PRÉSENCE DE DIFFUSION, DANS LE CAS OU LA RAIE DE RÉSONANCE ÉLECTRONIQUE EST INHOMOGÈNE

Par Jean-Loup MOTCHANE et Jean UEBERSFELD,
École Supérieure de Physique et Chimie de Paris,
Faculté des Sciences de Besançon.

Dans une communication antérieure [1] on a montré que la polarisation par « double effet » des noyaux d'un solide contenant des impuretés paramagnétiques était affectée par le caractère « inhomogène » de la raie de résonance des spins électroniques.

Le coefficient d'augmentation de la polarisation nucléaire ρ correspondant à l'une des 2 transitions de fréquence $\nu_0 \pm \nu_N$, où ν_0 représente la fréquence centrale de la fonction de répartition $G(\nu'_e)$ des fréquences de résonance électronique ν'_e, et ν_N la fréquence de résonance nucléaire dans un champ magnétique constant H_0, est donné par l'expression :

$$\rho = \frac{\bar{I}_z}{I_0} = 1 \mp A \frac{T_2}{t_2} \frac{\nu_0}{\nu_N} as(1 + as)^{-1/2} \Phi^{-1}(s) \qquad (1)$$

avec

$$\Phi(s) = 1 + \frac{1 + 3B}{1 + B} \left(\frac{T_2}{t_2}\right) (1 + as)^{1/2} + \frac{3B}{1 + B} \left(\frac{T_2}{t_2}\right)^2 (1 + as) + \frac{B}{1 + B} \left(\frac{T_2}{t_2}\right)^3 (1 + as)^{3/2}.$$

et

$$s = \gamma_e^2 t_1 t_2 H_1^2 \qquad a = \frac{\alpha_0}{2(\alpha_0 + \gamma)}$$

$$A = \frac{1}{1 + B} \qquad B = \frac{1}{4} \left(\frac{1}{2\pi T_2 \nu_N}\right)^2.$$

On appelle :

$\bar{I}_z$, la polarisation dynamique moyenne des noyaux,

I_0, la polarisation nucléaire à l'équilibre thermodynamique,

$2\pi T_2$, l'inverse de la demi-largeur à mi-hauteur de la fonction de répartition $G(\nu'_e)$.

t_1 et t_2 sont les temps de relaxation électronique, spin-réseau et spin-spin, γ_e le rapport gyromagnétique de l'électron, H_1 l'intensité du champ magnétique tournant de fréquence $\nu = \nu_0 \pm \nu_N$.

$w = \frac{1}{2t}$ et w_γ sont les probabilités de relaxation purement électronique et nucléaire.

$w_{\alpha 0}$ est la probabilité de relaxation aux fréquences $\nu'_e \pm \nu_N$.

Il est possible d'étendre les calculs antérieurs [1] au cas où l'on étudie la polarisation des noyaux d'un fluide au contact d'un solide paramagnétique poreux.

Le modèle moléculaire utilisé est le suivant [2]. On considère un pore du solide, constitué par exemple, par une sphère creuse de volume V et de rayon R qui contient le fluide. On suppose que les centres paramagnétiques sont situés à la surface de la sphère et qu'il existe au voisinage de cette surface une couche de fluide adsorbé.

On peut classer les centres paramagnétiques en 2 groupes. Le premier contiendra les centres paramagnétiques dont les fréquences de résonance ν'_e sont telles que $\nu'_e + \nu_N$, $\nu'_e - \nu_N$ ou ν'_e soit égal à la fréquence ν de la transition induite par le champ magnétique tournant d'intensité H_1.

Ce sont ces centres qui sont responsables de la polarisation nucléaire. On appellera V_P le volume occupé par les noyaux de la couche du fluide adsorbé qui sont liés par une interaction dipolaire statique à ces centres paramagnétiques.

Le deuxième groupe renferme les autres centres paramagnétiques. Ils ne participent que faiblement à la polarisation nucléaire mais constituent une cause de relaxation importante pour les noyaux en interaction avec eux.

On appellera V_S le volume occupé par les noyaux de la couche du fluide adsorbé qui ne sont pas compris dans V_P.

On considérera 3 régions dans le fluide :

— Les régions 1 et 2 qui comprendront respectivement les noyaux occupant les volumes V_P et V_S.

— La région 3 dans laquelle les noyaux, par suite de leur mouvement rapide, ne sont soumis à aucune interaction statique par les centres paramagnétiques.

Les molécules du fluide passent constamment de la région 3, aux régions 1 et 2 et réciproquement.

On désignera respectivement par τ_p et τ_s (temps d'accrochage) les temps pendant lesquels une molécule venant de la région 3 reste dans l'une des régions 1 et 2. On voit que pour que l'on puisse parler d'une interaction dipolaire statique entre les spins électroniques et nucléaires, dans les régions 1 et 2 il faut que les temps τ_p et τ_s soient plus longs que la durée de vie des états quantiques intervenant dans les transitions de fréquence ν.

Le temps de relaxation spin réseau T_1 des noyaux dans l'ensemble du fluide est donné par la formule (2) :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T'_1} + \frac{V_p}{V} \frac{1}{T_{1p} + \tau_p}$$

T_{1p} désigne le temps de relaxation spin-réseau des noyaux dans la région 1.

Le temps de relaxation spin-réseau T'_1, des noyaux dans la région 3 compte tenu de la relaxation dans la région 2, est donné par la formule de Torrey [2]

$$\frac{1}{T'_1} = \frac{1}{T_{10}} + \frac{V_s}{V} \frac{1}{T_{1s} + \tau_s}$$

où T_{1s} et T_{10} sont respectivement les temps de relaxation spin-réseau des noyaux dans les régions 2 et 3,

L'équation d'évolution en fonction du temps de la polarisation nucléaire I'_z, en présence de diffusion moléculaire (Équation de Torrey et de Bloch [3]) s'écrit dans la région 3.

$$\frac{\mathrm{d}I'_z}{\mathrm{d}t} = D \, \Delta I'_z - \frac{I'_z - I_0}{T'_1}$$

où D est la constante de diffusion.

Si la diffusion est assez rapide, c'est-à-dire si $(DT'_1)^{1/2} \gg R$, la polarisation nucléaire I'_z est une constante en régime permanent.

I'_z est relié à $\bar{I}_z$ polarisation nucléaire moyenne dans la région 1, par la condition de conservation de la polarisation en régime permanent, à la frontière des régions 1 et 3 :

$$\frac{I'_z - I_0}{T'_1} + \frac{V_p}{V} \frac{I'_z - \bar{I}_z}{\tau_p} = 0 \qquad (2)$$

$\bar{I}_z$ dans le cas où la raie de résonance électronique est inhomogène est donné par l'expression :

$$\bar{I}_z = \int_0^\infty I_z(\nu'_e) \, G(\nu'_e) \, \mathrm{d}\nu'_e \qquad (3)$$

où $I_z(\nu'_e)$ est la polarisation des noyaux de la région 1 en interaction avec les spins électroniques dont la fréquence de résonance est ν'_e.

$G(\nu'_e)$ est la fonction de répartition des fréquences ν'_e.

I_z calculé par des méthodes exposées antérieurement [4] est donné par la relation :

$$\frac{I_z}{I_0} = \frac{f'_2(\nu'_e)}{w\tau_p} \frac{I'_z}{I_0} + 2(\alpha_0 + \gamma) \, f'_2(\nu'_e) + f'_1(\nu'_e) \frac{S_0}{I_0} \qquad (4)$$

avec

$$f'_1(\nu'_e) = \frac{1}{D'} (\alpha_1 - \beta_1)(2 + 2\alpha_0)$$

$$f'_2(\nu'_e) = \frac{1}{D'} (2 + 2\alpha_0 + \alpha_1 + \beta_1 + 2\delta_1)$$

$$D' = \left(2\alpha_0 + 2\gamma + \frac{1}{w\tau_p}\right)(2 + 2\alpha_0 + \alpha_1 + \beta_1 + 2\delta_1) + (\alpha_1 + \beta_1)(2 + 2\alpha_0 + 2\delta_1) + 4\alpha_1 \beta_1$$

S_0 représente la polarisation électronique à l'équilibre thermodynamique.

w_{α_1}, w_{β_1} et w_{δ_1} probabilités de transition induites par le champ magnétique tournant H_1, aux fréquences respectives $\nu'_e + \nu_N$, $\nu'_e - \nu_N$ et ν'_e sont données par les relations :

$$\alpha_1 = \alpha_0 \, sf(\nu'_e, \quad \nu - \nu_N)$$

$$\beta_1 = \alpha_0 \, sf(\nu'_e, \quad \nu + \nu_N)$$

$$\delta_1 = sf(\nu'_e, \quad \nu).$$

$f(\nu'_e, \nu)$ est le profil de la courbe de résonance d'un paquet de spin.

On déduit des relations [2], [3] et [4] la valeur du coefficient d'amplication ρ' de la polarisation nucléaire dans le fluide

$$\rho' = \frac{I'_3}{I_0} = 1 + \frac{1}{d}\left[\bar{f}'_1 \frac{S_0}{I_0} + \bar{f}'_2 \left(2\gamma - 2\alpha_0 + \frac{1}{w\tau_p}\right) - 1\right] \qquad (5)$$

avec

$$d = 1 + \frac{\tau_p}{T'_1} \frac{V}{V_p} - \frac{\bar{f}'_2}{w\tau_p}$$

et

$$\bar{f}'_i = \int_0^\infty f'_i(\nu'_e) \, G(\nu'_e) \, \mathrm{d}\nu'_e \qquad i = 1, 2.$$

Si l'on admet que la fonction de répartition $G(\nu'_e)$ a une forme de Lorentz et si l'on pose :

$$G(\nu'_e) = \frac{2T_2}{1 + 4\pi^2 T_2^2(\nu'_e - \nu_0)^2}$$

on obtient l'expression suivante pour le coefficient d'amplification ρ' dans le cas où $\nu = \nu_0 \pm \nu_N$

$$\rho' = 1 \mp A' \frac{T_2}{t_2} \frac{\nu_0}{\nu_N} a's(1 + a's)^{-1/2} \, \Phi'^{-1}(s) \qquad (6)$$

avec

$$\Phi'(s) = 1 + \frac{1 + 3B}{1 + B}\left(\frac{T_2}{t_2}\right)(1 + a's)^{1/2} + \frac{3B}{1 + B}\left(\frac{T_2}{t_2}\right)^2 (1 + a's) + \frac{B}{1 + B}\left(\frac{T_2}{t_2}\right)^3 (1 + a's)^{3/2}$$

$$s = \gamma_e^2 \, t_1 \, t_2 \, H_1^2 \qquad a' = \frac{1}{2}\left[\frac{\alpha_0}{\alpha_0 + \gamma + \frac{t_1}{\tau_p}}\right]$$

$$A' = \frac{1}{1 + B} \frac{V_p}{V} \frac{T_1}{\tau_p} \qquad B = \frac{1}{4}\left(\frac{1}{2\pi \, T_2 \, \nu_N}\right)^2.$$

La formule (6), comme la formule (1), est valable dans le domaine ou s n'est pas trop élevé et où les termes d'ordre supérieur à $s^{1/2}$ dans $\Phi'(s)$ ainsi que dans $\Phi(s)$ sont négligeables.

Dans le cas étudié ici, l'existence d'un temps d'accrochage vient encore limiter la rapidité de croissance de ρ' en fonction de l'intensité H_1 du champ magnétique tournant.

Lettre reçue le 12 août 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Motchane (J. L.) et Uebersfeld (J.), *C. R. Acad. Sc.*, Séance du 25 juillet 1960.
[2] Torrey (H. C.), Korringa (J.), Deevers (D. O.) et Uebersfeld (J.), *Phys. Rev. Letters*, 1959, **3**, 418.
[3] Torrey (H. C.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 563.
[4] Motchane (J. L.) et Uebersfeld (J.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 194.

LA RÉSONANCE PARAMAGNÉTIQUE ÉLECTRONIQUE D'UN MONOCRISTAL DE GLYCOCOLLE IRRADIÉ PAR DES RAYONS GAMMA

Par G. Lomaglio et J. Uebersfeld,
Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne,
Université de Besançon.

Le monocristal étudié a été placé dans la cavité d'un spectromètre à résonance paramagnétique électronique de manière que l'axe de symétrie du monocristal (communément appelé l'axe b) coïncide avec l'axe de la cavité cylindrique et soit perpendiculaire au champ magnétique constant H_0.

En collaboration avec E. Erb, l'un de nous a remarqué [1] que la forme du spectre d'absorption de ce monocristal varie lorsqu'on le fait tourner autour de son axe. D'autre part, les spectres accusent deux formes caractéristiques nettement différentes comme le montrent les photographies ci-dessous et il est difficile de penser qu'un seul radical libre piégé dans le cristal soit responsable de ces deux types de spectre. Aussi avons-nous pensé [2], que la rupture de la liaison provoquée par l'irradiation donne naissance à deux radicaux libres, que nous avons tenté d'identifier.

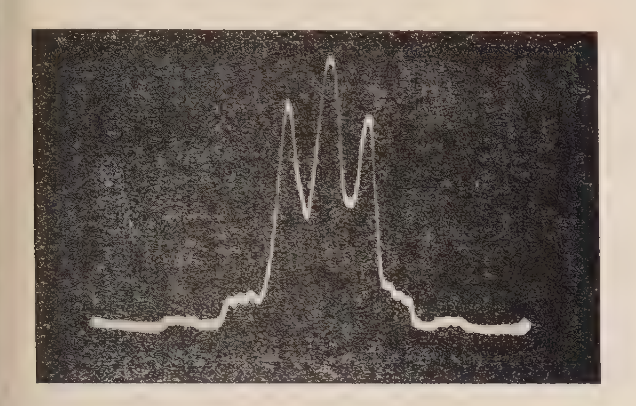


Fig. 1.

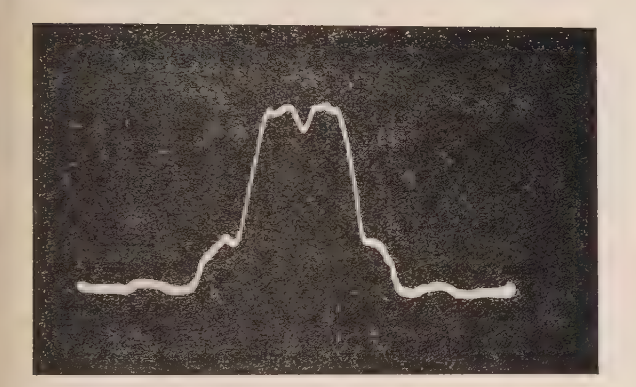


Fig. 2.

Essai d'identification des deux radicaux piégés dans le cristal. — Les différents spectres obtenus nous montrent l'existence de deux groupes de triplets latéraux, symétriques par rapport à l'axe du spectre, qu'il est tentant *a priori* d'attribuer à un groupement NH_3^* ; mais nous pensons comme Ghosh et Whiffen [3], que le couplage entre le spin électronique et le noyau de l'atome d'azote et les trois protons est insuffisant pour rendre compte de l'importance de l'espace noté (bf) sur la figure 3.

C'est pourquoi notre attention s'est portée sur chacune des mesures des intervalles (ab), (fg), (ag) à partir de tous les spectres obtenus. Cet examen nous a montré que dans tous les cas :

$$\frac{(ab) + (fg)}{2} = \frac{(ag)}{5} \text{ ou encore : } (bf) = 3(ag)/5.$$

Autrement dit, nous pensons que les groupes des triplets latéraux (chaque triplet étant dû à l'interaction hyperfine avec l'atome d'azote) font partie d'un spectre de six raies équidistantes, que l'on peut attribuer à

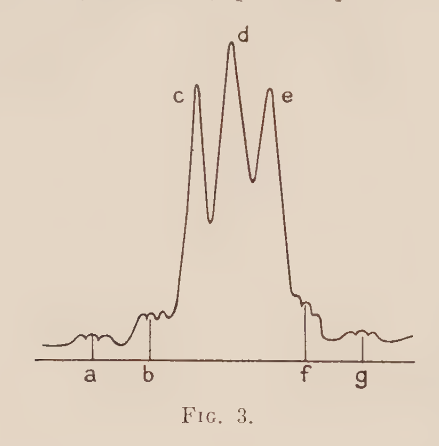


Fig. 3.

l'interaction d'un électron célibataire avec 5 protons également couplés.

Nous avons donc supposé, qu'un des radicaux piégé dans le cristal donnait un tel spectre. (Il peut s'agir en effet d'un radical de la forme $*NH_3 — CH_2$ puisque la formule du glycocolle cristallin est

$$NH_3^+ — CH_2 — CO_2^-) ;$$

la photographie figure 2, le laisse d'ailleurs pressentir. Nous avons reconstitué théoriquement le spectre de ce radical en donnant à chacune des raies la largeur moyenne repérée sur les photographies et les intensités convenables, qui pour notre hypothèse de 5 protons également couplés sont proportionnelles aux nombres 1, 5, 10, 10, 5, 1.

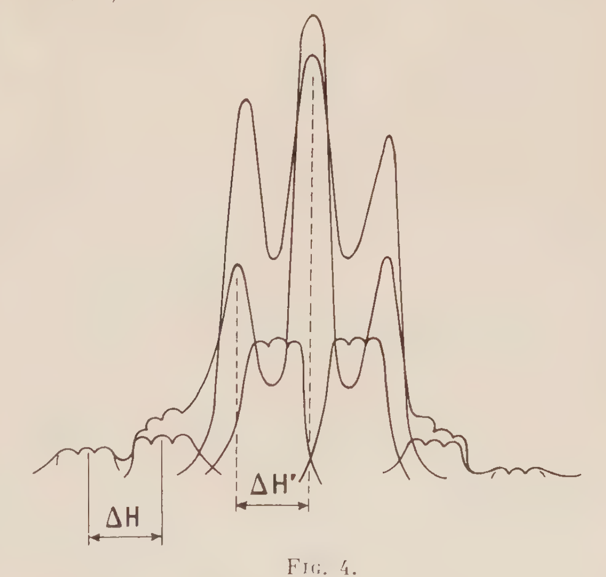


Fig. 4.

Cette reconstitution a été réalisée pour chaque spectre obtenu, et la différence entre le spectre observé et le spectre reconstitué du radical $*NH_3 — CH_2$ nous a fourni un ensemble de spectres, toujours en forme de triplet, évoluant rapidement en fonction de la rotation du cristal. La figure 4 illustre notre travail d'analyse,

qui une fois terminé nous a permis de penser que les spectres observés sont formés de la superposition d'un spectre de six raies équidistantes pouvant être attribué au radical $*NH_3 — CH_2$ et d'un triplet attribuable à un radical CH_2^* ou $CH_2 — CO_2^*$.

A partir de cette analyse, nous avons construit les courbes représentant les variations des séparations ΔH et $\Delta H'$ des raies de chacun des spectres en fonction de la rotation du cristal. Les variations sont sinusoïdales.

Nous avons vérifié que l'on peut rendre compte de ces variations à partir de l'hamiltonien de spin de radicaux libres piégés dans un cristal monoclinique. En partant de l'hamiltonien W ($W = g\beta \boldsymbol{HS} + F_1$), où $g\beta \boldsymbol{HS}$ est l'action directe du champ magnétique sur le spin et F_1 la fonction perturbatrice due à l'interaction entre les spins électroniques et les noyaux, et en développant au premier ordre, nous avons obtenu l'expression suivante caractérisant les différentes fréquences ν des transitions entre les sous-niveaux Zeemann :

$$h\nu = g\beta H + f(\varphi) \sum_i m_i$$

(m_i représente le spin d'un proton et φ l'angle dont tourne le cristal) ; la fonction $f(\varphi)$ s'écrit :

$$f(\varphi) = \frac{hc}{8} \left\{ \mathcal{A} \cos 2\varphi + \mathcal{B} \sin 2\varphi + \mathcal{C} \right\},$$

Dans ces formules h désigne la constante de Planck, c la vitesse de la lumière, β le magnéton de Bohr et g le facteur de Landé.

La courbe représentant $f(\varphi)$ ayant même allure que les courbes représentant les variations des séparations ΔH et $\Delta H'$ des raies de chacun des spectres, nous avons réalisé les deux identifications suivantes :

$$\Delta H = f(\varphi) \quad \text{et} \quad \Delta H' = f(\varphi).$$

Ce qui nous a permis de calculer pour chaque radical les constantes $\mathcal{A}$, $\mathcal{B}$, $\mathcal{C}$. Ces constantes ne nous donnent qu'un ordre de grandeur des couplages hyperfins à cause de l'hypothèse très simplificatrice à la base même de ce travail, qui consiste à admettre que les protons sont également couplés dans chaque radical libre étudié.

Nos résultats sont les suivants : pour le radical CH_2^* pour lequel nous nous sommes donné $\mathcal{B} = 0$, ce qui revient à faire un déphasage arbitraire, nous avons trouvé :

$$\mathcal{A} = 2.10^{-3}\ \text{cm}^{-1}, \qquad \mathcal{C} = 5.10^{-3}\ \text{cm}^{-1},$$

et pour le radical $NH_3 — CH_2$:

$$\mathcal{A} = \mathcal{B} = 10^{-3}\ \text{cm}^{-1}, \qquad \mathcal{C} = 6.10^{-3}\ \text{cm}^{-1}.$$

Ces valeurs sont raisonnables, car toutes inférieures à l'interaction qui existe entre le spin de l'électron de l'hydrogène et celui de son noyau.

Lettre reçue le 22 août 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Uebersfeld (J.) et Erb (E.), *C. R. Acad., Sc.*, 1956, **242**, 478.
[2] Lomaglio (G.), Thèse du 3e cycle, Besançon, décembre 1958.
[3] Ghosh (D. K.) et Whiffen (D. H.), *Mol. Phys.*, G.-B., 1959, n° 3, **2**, 285-300.

AU SUJET DE L'HAMILTONIEN DE SPIN APPLICABLE A UN MONOCRISTAL APPARTENANT AU SYSTÈME ORTHORHOMBIQUE

Par G. Lomaglio,
Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne,
Université de Besançon.

Le but de cet exposé est de donner l'expression générale des niveaux d'énergie d'un centre paramagnétique, calculés au premier et au deuxième ordre. L'intérêt d'un tel calcul est de permettre l'interprétation des spectres de résonance paramagnétique des « radicaux libres » créés par irradiation dans des substances organiques à faible symétrie. Nous nous plaçons dans le cas où l'interaction spin-spin est anisotrope et où le noyau possède un moment quadrupolaire non négligeable, mais nous négligeons l'action directe du champ sur le noyau.

Nous exprimons l'hamiltonien de spin en fonction des données suivantes :

a) les trois angles d'Euler δ, θ, φ, repérant la direction du champ magnétique par rapport aux axes du champ cristallin (x, y, z) ;

b) les trois angles d'Euler u, ψ, v repérant l'axe de quantification du spin effectif S ;

c) les trois angles d'Euler U, Ψ, V repérant l'axe de quantification des spins nucléaires.

Pour un champ électrique cristallin à symétrie orthorhombique, l'hamiltonien de spin s'écrit [1] :

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_s = {} & \beta(g_x H_x S_x + g_y H_y S_y + g_z H_z S_z) \\ & + D\left\{ S_z^2 - \frac{1}{3} S(S+1) \right\} + E(S_x^2 - S_y^2) \\ & + A_z S_z I_z + B_x S_x I_x + C_y S_y I_y \\ & + P\left\{ I_z^2 - \frac{1}{3} I(I+1) \right\} + P'(I_x^2 - I_y^2), \end{aligned} \qquad (1)$$

où S et I sont les opérateurs des spins électronique et nucléaire, H_x, H_y, H_z les composantes du champ magnétique dans le système de coordonnées x, y, z ; g_x, g_y, g_z les composantes du tenseur de susceptibilité, β le magnéton de Bohr, D et E les constantes de structure fine, A_z, B_x, C_y celles de structure hyperfine, P et P' les constantes de couplage quadrupolaire.

Le premier terme de $\mathcal{H}_s$ est le terme principal, les termes suivants considérés comme des perturbations :

$$D\left\{ S_z^2 - \frac{1}{3} S(S+1) \right\} + E(S_x^2 - S_y^2)$$

est la perturbation due au champ cristallin, les trois termes suivants constituent la perturbation due à l'interaction hyperfine, et les deux derniers sont relatifs à la perturbation due au moment quadrupolaire.

1. Calcul des niveaux d'énergie au premier ordre. — *a*) Le terme principal de l'hamiltonien s'écrit plus simplement :

$$\mathcal{H}_p = \beta H_0 g M \qquad (2)$$

avec

$$g^2 = \sin^2\theta \sin^2\delta\ g_x^2 + \sin^2\theta \cos^2\delta\ g_y^2 + \cos^2\theta\ g_z^2,$$

ce qu'on écrit encore :

$$g^2 = \sin^2\theta\ g_\perp^2 + \cos^2\theta\ g_{//}^2$$

en posant

$$g_{//} = g_z \text{ et } g_\perp^2 = \sin^2\delta\ g_x^2 + \cos^2\delta\ g_y^2.$$

b) Le calcul de la perturbation due au champ cristallin nécessite la connaissance des éléments de matrice $< M|S'_z|M' >$, $< M|S'_+|M' >$, $< M|S'_-|M' >$ avec $M' = M \pm 1$ et l'application des formules de changement d'axes :

$$\begin{cases} S_x = \alpha_1 S'_x + \beta_1 S'_y + \gamma_1 S'_z \\ S_y = \alpha_2 S'_x + \beta_2 S'_y + \gamma_2 S'_z \\ S_z = \alpha_3 S'_x + \beta_3 S'_y + \gamma_3 S'_z \end{cases}$$

afin d'exprimer la perturbation en fonction des quantités S'.

La valeur moyenne du potentiel perturbateur dans l'état non perturbé nous donne le développement de la perturbation au premier ordre :

$$M^2\left[\frac{D}{2}(3\cos^2\psi - 1) - \frac{3E}{2}\cos 2u(1 - \cos^2\psi)\right] \quad (4)$$

pour le terme dépendant de M^2, le terme indépendant de M est laissé de côté, car il ne donne pas de contribution dans le calcul des fréquences des transitions. Notons encore que les angles ψ et u sont liés aux angles θ et δ par les relations :

$$\begin{cases} \sin\psi = \dfrac{g_\perp}{g}\sin\theta \\ \cos\psi = \dfrac{g_{//}}{g}\cos\theta \end{cases} \qquad \begin{cases} \sin u = \dfrac{g_x}{g_\perp}\sin\delta \\ \cos u = \dfrac{g_y}{g_\perp}\cos\delta. \end{cases} \quad (4\ bis)$$

L'hamiltonien de structure fine développé au premier ordre s'écrit donc :

$$\mathcal{H}_s = g\beta H_0 M + M^2 \quad (5)$$

$$\left\{\frac{D}{2}\left(\frac{3g_{//}^2\cos^2\theta}{g^2} - 1\right) - \frac{3E}{2}\cos 2u\left(1 - \frac{g_{//}^2\cos^2\theta}{g^2}\right)\right\}.$$

c) Dans le champ magnétique constant H_0, chaque état de spin effectif marqué $|M >$ consiste en $2I + 1$ sous-états notés sous la forme $|M, m >$ au point de vue de la structure hyperfine (m prenant les valeurs : $I, I - 1, I - 2, \ldots, -I$).

Pour évaluer la perturbation due à l'interaction hyperfine, nous sommes amenés à évaluer les éléments de matrice :

$$< M, m|S'_z I''_z|M, m >,$$

$$< M, m|S'_+ I''_-|M + 1, m - 1 >,$$

$$< M, m|S'_+ I''_+|M + 1, m + 1 >,$$

$$< M, m|S'_- I''_+|M - 1, m + 1 >,$$

$$< M, m|S'_- I''_-|M - 1, m - 1 >,$$

et à exprimer les produits :

$A_z S_z I_z + B_x S_x I_x + C_y S_y I_y$ en fonction des quantités connues $S'I''$. Ce travail effectué, nous trouvons que la perturbation de structure hyperfine développée au premier ordre est :

$$Mm\{A_z\cos\psi\cos\Psi$$

$$+ B_x\sin u\sin U + C_y\cos u\cos U)\sin\psi\sin\Psi\}. \quad (6)$$

En faisant dans cette expression $u = U = 0$, $B_x = C_y = B$, $A_z = A$, nous retrouvons le résultat classique relatif au champ électrique cristallin à symétrie axiale : soit KMm avec les formules de Bleaney [2] :

$$K^2 g^2 = A^2 g_{//}^2 \cos^2\theta + B^2 g_\perp^2 \sin^2\theta$$

$$\sin\Psi = \frac{Bg_\perp\sin\theta}{Kg} \quad \text{et} \quad \cos\Psi = \frac{Ag_{//}\cos\theta}{Kg}. \quad (7)$$

d) Le calcul de la perturbation due au moment quadrupolaire est très simple, il se fait d'une manière analogue à celui de la perturbation due au champ cristallin. Il nécessite la connaissance des éléments de matrice :

$$< m|I''_z|m' >, \qquad < m|I''_+|m' >$$

$$< m|I''_-|m' > \quad \text{avec} \quad m' = m \pm 1.$$

Pour le développement au premier ordre de cette perturbation, le résultat obtenu est le suivant :

$$m^2\left\{\frac{P}{2}\left[3\frac{A^2 g_{//}^2\cos^2\theta}{K^2 g^2} - 1\right]\right.$$

$$\left. - \frac{3P'}{2}\cos 2U\frac{B^2 g_\perp^2\sin^2\theta}{K^2 g^2}\right\} \quad (8)$$

et un terme indépendant de m, que nous laissons de côté. Remarquons immédiatement que ce terme est nul pour une transition de la forme

$$(M, m \to (M - 1, m).$$

Les paragraphes précédents *c*) et *d*) nous donnent, par les formules (6) et (8) compte tenu de (7), les termes à ajouter à l'hamiltonien de spin donné sous la forme (5) lorsqu'il y a interaction hyperfine et un moment quadrupolaire, les perturbations n'étant développées qu'au premier ordre.

2. **Extension au deuxième ordre.** — Nous avons poussé le développement de ces trois perturbations jusqu'au second ordre, mais les calculs qui permettent d'aboutir aux résultats sont très longs et nous ne pouvons les reproduire tous dans cette note. En particulier celui du développement au second ordre de l'interaction hyperfine est une fonction compliquée de tous les paramètres u, U, v, V, ψ, Ψ, qui tient à elle seule plusieurs pages et qui sera publiée ailleurs. Quant aux développements des perturbations dues au champ cristallin et au moment quadrupolaire, ils sont plus simples et nous nous bornerons à les présenter par les formules suivantes (9) et (10) :

$$\frac{1}{g\beta H_0}\left\{2M(2M^2 + 1/4) - 2MS(S + 1)\right\}$$

$$\left[\frac{g_{//}^2 g_\perp^2}{g^4}\sin^2\theta\cos^2\theta(D + E\cos 2u)^2\right.$$

$$+\left(\frac{g_{\perp}\sin 2u}{g}\right)^2 E^2 \sin^2\theta\Bigg]$$

$$+\frac{1}{8g\ \beta H_0}\left\{2MS(S+1)-2M^3-M\right\}$$

$$\left\{\left[D\left(1-\frac{g_{\parallel}^2\cos^2\theta}{g^2}\right)-E\cos 2u\left(1+\frac{g_{\parallel}^2\cos^2\theta}{g^2}\right)\right]^2\right.$$

$$\left.+4\left(E\sin 2u\,\frac{g_{\parallel}\cos\theta}{g}\right)^2\right\}. \qquad (9)$$

$$\frac{4mI(I+1)-8m^3-m}{2KM(M-1)}$$

$$\left\{(P+P'\cos 2U)^2\left(\frac{AB\,g_{\parallel}\,g_{\perp}\sin\theta\cos\theta}{K^2 g^2}\right)^2\right.$$

$$\left.+\frac{B^2 P'^2\sin^2 2U g_{\perp}^2\sin^2\theta}{K^2 g^2}\right\}-\frac{m[2I(I+1)-2m^2-1]}{8KM(M-1)}$$

$$\left\{\left[\frac{PB^2 g_{\perp}^2\sin^2\theta}{K^2 g^2}-P'\cos 2U\left(1+\frac{A^2 g_{\parallel}^2\cos^2\theta}{K^2g^2}\right)\right]^2\right.$$

$$\left.+4P'^2\sin^2 2U\,\frac{A^2 g_{\parallel}^2\cos^2\theta}{K^2 g^2}\right\}. \qquad (10)$$

L'expression (9) est conforme à celle donnée par Weger et Low. L'expression (10) donnant l'influence du moment quadrupolaire n'a jamais été publiée à notre connaissance. Avant de terminer nous pouvons encore signaler que nous retrouvons tous les résultats établis par Bleaney à partir des nôtres, car pour nous placer dans le cas d'un champ cristallin à symétrie axiale, il suffit de faire dans nos formules : $u = U = 0$, $v = V = 0$, $E = 0$, $P' = 0$, $A_z = A$, $B_x = C_y = B$.

Nous tenons à remercier ici M. Uebersfeld, Professeur à la Faculté des Sciences pour ses conseils et son aide.

Lettre reçue le 22 août 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Low (William), (Paramagnetic Resonance in Solids). Solid State Physics, suppl. 2, chap. 2, paragraphes 8-9-10.
[2] Bleaney (B.), Philosophical Magazine, Ser. 7, vol. XLII-441, May 1951.

MESURES DE CORRÉLATION BÉTA-GAMMA POLARISATION CIRCULAIRE SUR ^{198}Au ET ^{122}Sb.

Par J. P. Deutsch (*) et P. Lipnik (*),
Centre de Physique Nucléaire,
Université de Louvain, Belgique.

Les résultats préliminaires de ces mesures ont été communiqués au Colloque de Grenoble de la Société Française de Physique (29 février, 1er et 2 mars 1960) [1]. Nous avions signalé à cette occasion une influence du champ magnétique de fuite du diffuseur sur le circuit de coïncidence et nous avions évalué la correction à apporter aux résultats.

Dans cette lettre, nous publions les résultats obtenus en éliminant cette erreur systématique. A défaut d'étalonnage absolu (**) nous rapportons la polarisation trouvée dans ^{122}Sb à celle mesurée pour ^{198}Au ; nous acceptons comme polarisation réelle la moyenne, pondérée par leurs erreurs, des résultats rapportés par d'autres chercheurs. Les résultats sont repris dans le tableau 1.

TABLEAU 1

Expérience	A_1
F. Boehm et A. H. Wapstra [4]	0,52 ± 0,09
J. Berthier et al. [5]	0,34 ± 0,05
R, M. Steffen [6]	0,45 ± 0,07
Valeur moyenne pondérée	0,40 ± 0,04

Ce procédé revient à « étalonner » notre polarimètre par la mesure de la polarisation circulaire du rayon gamma de 411 keV de ^{198}Au. Pour tenir compte de la différence d'énergie entre ce rayon gamma et celui de ^{122}Sb (564 keV), nous multiplions l'analysibilité par un facteur correctif de 1,13 obtenu à partir des figures de mérite de la référence [3]. Nous négligeons donc la variation avec l'énergie de la contribution de la diffusion multiple ainsi que celle de l'aimantation effective éventuellement différente due à une pénétration plus ou moins grande dans le diffuseur. D'après les résultats préliminaires des calculs d'analysibilité, l'influence de la variation de ces facteurs est d'un ordre de grandeur inférieur aux erreurs statistiques.

Le dispositif expérimental est décrit ailleurs [1, 2, 3]. Sa bonne marche a été contrôlée : 1) en suivant la variation, due à la décroissance de source, du nombre des signaux et du rapport des coïncidences réelles à celui des fortuites ; 2) en calculant la dispersion des résultats partiels et des résultats journaliers ; cette dispersion se situait entre 0,7 et 0,8 écart standard.

L'influence du champ magnétique de fuite du polarimètre a été déterminée en contrôlant le nombre des signaux dans les canaux latéraux (voir réf. 1) et en effectuant des mesures pour une valeur $\hat{\theta} = 90°$ ($\hat{\theta}$ est l'angle moyen formé par les directions d'émission des rayons bêta et gamma détectés) ; l'effet moyen obtenu a été de $(0{,}036 \pm 0{,}115)$ %.

Dans les mesures de ^{198}Au la source était une feuille d'or métallique de 270 microgramme/cm^2 ; dans celles de ^{122}Sb elle était une feuille d'antimoine métallique de 4 mg/cm^2. (L'épaisseur du support de source était négligeable par rapport à celle de la source.)

L'influence d'une diffusion éventuelle des rayons bêta dans les matériaux de la source a été contrôlée de la façon suivante : nous avons couvert les deux côtés d'une source de ^{198}Au : 1) de deux feuilles d'or de 270 microgrammes/cm^2 ; 2) d'une feuille d'antimoine de 4 mg/cm^2.

Les résultats obtenus dans ces conditions sont, aux erreurs statistiques près, identiques à ceux obtenus avec les sources de ^{198}Au non recouvertes. (Les effets rapportés à ceux obtenus par les sources non recou-

(*) Chercheur agréé de l'I. I. S. N., Belgique.
(**) Des calculs et des mesures d'analysibilité du polarimètre sont en cours et seront publiés ultérieurement.

vertes sont : 1) 1,10 ± 0,46 et 2) 0,89 ± 0,18.) Remarquons d'ailleurs qu'une dépolarisation éventuelle devrait être encore plus petite pour les rayons bêta du ^{122}Sb d'énergie moyenne plus grande que ceux de ^{198}Au employés aux mesures de contrôle.

La diffusion dans l'air a été trouvée négligeable ; il n'en était pas de même de la rétro-diffusion sur le diaphragme de plomb situé non loin derrière la source (voir par ex. figure 1 de la référence 3) : cette rétro-diffusion a été éliminée en couvrant le diaphragme d'un matériau léger.

A_1 est liée à l'effet e mesuré expérimentalement par la relation (pour les notations voir par ex. référence 1)

$$A_1 = \frac{e}{2f \cos\theta\, v/c\, \Phi_c/\Phi_0\, (1 - P)} = \frac{e}{Kv/c\,(1 - P)}.$$

Utilisant la valeur moyenne pondérée de A_1 indiquée au tableau 1, et nos mesures de corrélation bêta-gamma polarisation circulaire, nous obtenons pour la constante d'étalonnage $K = 2f$ la valeur moyenne de $K = (3{,}98 \pm 0{,}44)$ %.

Pour ^{122}Sb nous obtenons les valeurs consignées au tableau 2.

TABLEAU 2

e %	v/c	$(1 - P)$	$\cos\theta$	K (^{122}Sb) = 1.13 % (^{198}Au)	A_1
— 0,02 ± 0,12	0,890 ± 0,025	0,97 ± 0,05	0,960 ± 0,005	4,50 ± 0,50	— 0,034 ± 0,034

Cette valeur de A_1 nous fournit dans l'approximation ξ la valeur du rapport V/Y pour la transition bêta principale de ce noyau (pour la notation employée voir par ex. référence [7]. Nous obtenons :

$$V/Y = + 0{,}25 \pm 0{,}05.$$

Une seconde solution serait $V/Y > + 12$).

Nous venons d'être informés par R. M. Steffen de mesures analogues entreprises à Purdue University. Nous le remercions de ses informations et des discussions intéressantes que nous avons pu avoir avec lui. M. le Pr M. de Hemptinne a bien voulu nous montrer l'intérêt qu'il portait à ce travail ; nous avons largement profité des conseils de M. le Pr P. C. Macq. Nous tenons à leur exprimer nos plus vifs remerciements.

Lettre reçue le 21 septembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] De Croès (M.), Deutsch (J. P.) et Lipnik (P.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 442.
[2] Deutsch (J. P.) et Lipnik (P.), *Ann. Soc. Sc.*, Bruxelles, 1959, **73**, 420.
[3] Deutsch (J. P.) et Lipnik (P.), *Bull. Soc. Belge Physique*, 1960, II, 89.
[4] Boehm (F.) et Wapstra (A. H.), *Phys. Rev.*, 1956, **109**, 456.
[5] Berthier (J.) et al., *Helv. Phys. Acta*, 1958, **30**, 483.
[6] Steffen (R. M., *Phys. Rev.*, 1960, **118**, 763.
[7] Kotani (T.), *Phys. Rev.*, 1959, **114**, 795.

NOUVEAUX TYPES D'INTERACTION EN THÉORIE NON LOCALE DE CHAMP MÉSIQUE

Par E. Arnous,
Institut Henri-Poincaré.

Un certain nombre de faits expérimentaux suggèrent l'existence d'une « coupure » des interactions au voisinage de la masse M du nucléon : par exemple la différence de masse $\pi^\pm - \pi^0$ [1], la différence de masse p — n [2], la diffusion électron-nucléon [3], etc... Il est possible d'introduire cette coupure dans une théorie non locale par l'intermédiaire d'un facteur de forme $\rho(p, q)$ C — P — T et Lorentz — invariant. Il suffit de choisir pour ρ une fonction convenable de l'invariant

$$Q(p, q) \equiv p^2 q^2 - (p \cdot q)^2,$$

par exemple

$$\rho(p, q) \equiv \lambda^2 m^2 / (\lambda^2 m^2 + Q),$$

où λ est la coupure $\sim M$ et m la masse de la particule [4].

Or, dès que l'on introduit un facteur de forme, le nombre d'invariants que l'on peut utiliser dans l'hamiltonien d'interaction augmente. En effet, en dehors des termes usuels d'interaction, « coupés » au voisinage de M, tout autre interaction est *a priori* possible, si elle n'agit qu'aux énergies voisines de M, où l'expérience suggère « qu'il ne passe quelque chose ». De telles interactions sont actuellement inobservables en électrodynamique, étant donnée la précision expérimentale (la coupure est trop haute). Mais, en théorie mésique, elles peuvent jouer un rôle important et sont susceptibles d'expliquer des phénomènes tels que les résonances secondaires dans la diffusion pion-nucléon.

Les différents types possibles d'interaction sont les suivants : En électrodynamique

$$H_{\text{int.}} \sim \int d^4 p\, d^4 q\, d^4 k\, \bar{\psi}(p)\, \Gamma_\mu(p, q)\, \psi(q)\, A_\mu(k),$$

$$\Gamma_\mu \equiv a(p, q)\, \gamma^\mu + ib(p, q)\, (p + q)_\mu + c_5(p, q)(p + q)_\mu\, \gamma^5,$$

où a correspond au terme usuel ($a \equiv \rho$).

b est un scalaire et c_5 un pseudo-scalaire et

$$b, c_5 \sim \frac{\lambda m^2}{\lambda^2 m^2 + Q}\, \frac{Q}{\lambda^2 m^2 + Q}.$$

Le premier facteur « éteint » l'interaction aux énergies un peu supérieures à λ, le second facteur, $Q/(\lambda^2 m^2 + Q)$, aux énergies inférieures à λ.

En théorie mésique,

$$H_{\text{int.}} \sim \int d^4 p\, d^4 q\, d^4 k\, \bar{\psi}(p)\, \Gamma_5(p, q)\, \psi(q)\, \Phi(k),$$

$$\Gamma_5 \equiv a(p, q)\, \gamma^5 + b(p, q)\, (p + q)_\mu\, \gamma^5 \gamma_\mu + c_5(p, q) + d_5(p, q)\, (p + q)_\mu{}^\mu\, \gamma^\mu$$

a (ou b) correspond au terme usuel avec facteur de forme : a (ou b) $\equiv \rho$.

Les autres facteurs de forme sont du type

$$\lambda M^2 Q/(\lambda^2 M^2 + Q)^2 ;$$

ils s'annulent à la limite locale $\lambda \to \infty$.

Lettre reçue le 23 septembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] FEYNMAN (R. P.) et SPEISMANN (G.), *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 500.
[2] O'RAIFEARTAIGH (L.), SREDNIAWA (B.) et TERREAUX (Ch.), *Nuovo Cim.*, 1959, **14**, 376.
[3] PANDIT (L. K.), *Helv. Phys. Acta*, 1958, **31**, 379.
[4] ARNOUS (E.), HEITLER (W.) et TAKAHASHI (Y.), *Nuovo Cim.*, 1960, **16**, 671 et ARNOUS (E.), HEITLER (W.) et O'RAIFEARTAIGH (L.), *Nuovo Cim.*, 1960, **16**, 785.

MESURE CALORIMÉTRIQUE DE LA PÉRIODE DE ^{198}Au

Par J. ROBERT,
Laboratoire Curie.

Nous avons mesuré la période radioactive de ^{198}Au avec notre installation de microcalorimétrie adiabatique à compensation automatique décrite précédemment [1].

L'or 198 décroît essentiellement par émission β de 0,960 MeV, suivie d'une émission γ de 0,412 MeV. Deux autres transitions β de faible pourcentage aboutissent l'une à un état excité de 1,088 MeV, l'autre à l'état fondamental.

Divers travaux ont été déjà publiés sur la période de ^{198}Au ; les principales valeurs obtenues sont, par ordre chronologique, les suivantes :

Silver	(1949)	$T = 2{,}69 \pm 0{,}01$ j	[2]
Sinclair et Holloway	(1951)	$T = 2{,}73 \pm 0{,}01$ j	[3]
Locket et Thomas	(1953)	$T = 2{,}697 \pm 0{,}003$ j	[4]
Bell et Yaffe	(1954)	$T = 2{,}699 \pm 0{,}003$ j	[5]
Tobailem	(1955)	$T = 2{,}686 \pm 0{,}005$ j	[6]
Johansson	(1956)	$T = 2{,}697 \pm 0{,}005$ j	[7]
Sastre et Price	(1956)	$T = 2{,}694 \pm 0{,}006$ j	[8]

Ces différents auteurs ont utilisé pour ces mesures des compteurs G. M. ou des chambres d'ionisation.

Nous avons fait irradier une feuille d'or de 192 mg à la pile EL 3 et avons suivi sa décroissance pendant cinq jours dans un calorimètre en or de 3 mm d'épaisseur pesant 66 g, absorbant la totalité du rayonnement β et une part importante du rayonnement γ. L'intensité de la source, au début des mesures, était de l'ordre de 2 curies ; l'élévation de température horaire était de l'ordre de 1,9 degré.

La source a été passée au photo-tube après une décroissance suffisante : aucune rayonnement étranger (^{199}Au, etc...) n'y a été décelé de façon appréciable.

L'analyse des points expérimentaux par la méthode des moindres carrés a donné, comme valeur de la période :

$$T = 64{,}79 \pm 0{,}09 \text{ heures}$$

soit

$$2{,}699 \pm 0{,}004 \text{ jours.}$$

Cette valeur est en accord avec les précédents résultats bien qu'obtenue par une méthode toute différente.

Lettre reçue le 17 octobre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] ROBERT (J.), Thèse Doctorat, *Ann. Physique*, 1959, **4**, 89.
[2] SILVER, *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 589 A.
[3] SINCLAIR et HOLLOWAY, *Nature*, 1951, **167**, 365.
[4] LOCKET et THOMAS, *Nucleonics*, 1953, **11**, 14.
[5] BELL et YAFFE, *Can. J. Phys.*, 1954, **32**, 416.
[6] TOBAILEM, Thèse Doctorat. *Ann. Physique*, 1955, **10**, 783.
[7] JOHANSSON, *Arkiv. Phys.*, 1956, **10**, 247.
[8] SASTRE et PRICE, *Nuclear Sc. Ing.*, 1956, **1**, 325.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. — Dépôt légal : 4e trim. 1960. — Imp. TAFFIN-LEFORT, à Lille (France).